

BANDSTRUKTURUNTERSUCHUNGEN

VON

FERROMAGNETISCHEM NICKEL

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

des Fachbereiches Physik

der

Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt

von

Erwin Marschall

München, im Juni 1976



1. Berichterstatter: Prof. Dr. H. Bross
2. Berichterstatter: Prof. Dr. K. Stierstadt

Tag der mündlichen Prüfung: 29. Juli 1976

ZUSAMMENFASSUNG

Eine in wenigen Punkten der Brillouinzone vorliegende Bandstruktur von paramagnetischem Nickel wird mit einem Verfahren interpoliert, das auf verallgemeinerten Wannierfunktionen beruht. Durch Berücksichtigung der intraatomaren Coulombwechselwirkung nach Hubbard wird eine ferromagnetische Bandstruktur selbstkonsistent bestimmt.

Zur Interpolation eines 9-Band-Komplexes wird die Matrix des Hamiltonoperators geeignet parametrisiert, wobei Symmetrieforderungen die gruppentheoretischen Entartungs- und Zusammenhangsverhältnisse erzwingen. Die ferromagnetische Bandstruktur ergibt sich aus zwei Eigenwertgleichungen für $\text{Spin}\uparrow$ und $\text{Spin}\downarrow$, die in numerisch einfach zu behandelnder Weise miteinander gekoppelt sind. Die experimentell bestimmte effektive Magnetonenzahl legt dabei den Wert eines ferromagnetischen Parameters fest.

Die Spinaufspaltung ist stark $\vec{k}$ -abhängig. Die Zustandsdichten für die beiden Spinrichtungen zeigen eine ausgeprägte Spitze oberhalb bzw. unterhalb der Fermienergie.

Breite der d-Bänder, Spinaufspaltung und Spinpolarisation an der Fermienergie sind in guter Übereinstimmung mit experimentellen Befunden.

Zur Aufstellung der Bewegungsgleichung für die transversale dynamische Spinsuszeptibilität χ^{-+} wird der Hubbard-Hamiltonoperator benutzt. Relativ weitgehende Näherungen für $e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}}$ -Matrizelemente können durch Kontrollrechnungen mit exakten MAPW-Wellenfunktionen bestätigt werden. Der sich ergebende Ausdruck für χ^{-+}

ist eine Verallgemeinerung für einen Bandkomplex des Resultates von Izuyama, Kim und Kubo.

Die sehr rechenintensive numerische Auswertung liefert die Dispersionsrelation der Spinwellen. Berücksichtigt man die numerischen Unsicherheiten, so ist die Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen befriedigend.

Inhaltsverzeichnis

<u>Kapitel</u>		<u>Seite</u>
1	Einleitung	1
1.1	Anmerkungen und häufig vorkommende Symbole	4
2	Zum Interpolationsverfahren	5
2.1	Grundlagen	5
2.2	Aufbereitung für eine numerische Behandlung	8
3	Erweiterung des Interpolationsverfahrens zu einem Modell für den ferromagnetischen Fall	13
3.1	Vorbetrachtung	13
3.2	Zum Hubbard-Operator	16
3.3	Ein Modell für ferromagnetisches Nickel	18
4	Zur transversalen dynamischen Spinsuszeptibilität χ^{-+}	22
4.1	Bedeutung, Definition	22
4.2	Die Bewegungsgleichung in RPA-Näherung	24
4.3	Weitere Näherungen	27
4.4	Ein geschlossener Ausdruck für χ^{-+}	28
5	Zur Numerik - Ergebnisse	30
5.1	Wahl des Bandkomplexes	30
5.2	Interpolation der paramagnetischen Bandstruktur	32
5.3	Die ferromagnetische Bandstruktur	35
5.4	Vergleich mit experimentellen Ergebnissen	43
5.5	Zur Näherung für die $e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}}$ -Matrixelemente	48
5.6	Berechnung der Matrix Γ	50
5.7	Ergebnisse für χ^{-+}	52
	Dispersion der Spinwellen	
	Vergleich mit experimentellen Daten	
Anhang 1	Das Wigner-Theorem	55

Literaturverzeichnis

1. EINLEITUNG

Seit der Arbeit von Heisenberg [1] gilt der Ferromagnetismus der Nichtleiter als "prinzipiell" verstanden. In diesem Modell werden die Elektronen als an den Atomen lokalisiert angenommen.

Für die ferromagnetischen d-Übergangsmetalle (kurz d-Metalle) mit ihren teilweise besetzten d-Bändern ist diese Annahme sicher nicht gerechtfertigt, da die "d-Elektronen" beweglich sind [2,3]. Dies führte Slater [4] und Stoner [5] dazu, ein Bändermodell des Ferromagnetismus der d-Metalle vorzuschlagen. Das einfachste ist das von Stoner [6] und Wohlfarth [7]. In diesem Modell wird die Existenz eines "Molekularfeldes" postuliert, das die Energien der als frei, eventuell mit einer effektiven Masse m^* , betrachteten Elektronen verändert. Die Energie der "Majoritätselektronen" ($\text{Spin}\uparrow$) bzw. der "Minoritätselektronen" ($\text{Spin}\downarrow$) wird abgesenkt bzw. angehoben. Die naheliegende Verallgemeinerung besteht darin, von einer unmagnetischen (paramagnetischen) Bandstruktur ausgehend, zu zwei starr gegeneinander verschobenen Bandstrukturen für $\text{Spin}\uparrow$ und $\text{Spin}\downarrow$ überzugehen.

Die moderne Interpretation des Bandmodells für den Ferromagnetismus besagt, daß zwei Bandstrukturen für die beiden Spinrichtungen zu überlagern sind, die aber eine $\vec{k}$ -abhängige Aufspaltung zeigen.

Die Berücksichtigung der Spin-Bahn-Kopplung ändert zumindest bei Nickel nicht viel. Es werden zwar einige zufällige Entartungen aufgehoben, aber die Klassi-

fizierung nach $\text{Spin}\uparrow$ und $\text{Spin}\downarrow$ bleibt in großen Bereichen der Brillouinzone möglich, da die Aufspaltung durch die Spin-Bahn-Kopplung klein gegenüber der ferromagnetischen Spinaufspaltung ist.

Das Hauptproblem des Bändermodells besteht nun darin, das Auftreten des "Molekularfeldes" zu erklären, bzw. die Ursache dafür anzugeben, daß die Elektronen sich nicht auf beide Spineinstellungen gleichmäßig verteilen. Nach Slater [4] ist diese Ursache vor allem die intraatomare Austauschwechselwirkung (Ursache auch für die Hund'sche Regel), nach Hubbard [10,11] und anderen bewirkt dies vor allem die Coulombwechselwirkung zwischen Elektronen mit antiparallelem Spin. Herring [12], Mott [3] und andere haben sich ausführlich mit diesen Fragen auseinandergesetzt, ohne zu einer endgültigen Antwort zu kommen.

Neuerdings wird sogar die bandtheoretische Beschreibung des Ferromagnetismus der d-Metalle in Zweifel gezogen [13,14]. Es ist allerdings fraglich, ob die zur Begründung herangezogenen experimentellen Ergebnisse diese Zweifel rechtfertigen [15,16].

Neben den in der Literatur vorhandenen neueren "first principles" Bandstrukturrechnungen von paramagnetischem und ferromagnetischem Nickel [17-20,8] gibt es eine Reihe von Modellrechnungen [21-23], die auf den sogenannten "kombinierten Interpolationsverfahren" von Müller [24] oder Hodges et al. [21] beruhen. Die Flexibilität und Schnelligkeit der Interpolationsverfahren erlauben es, die Gültigkeit von Modellhamiltonoperatoren in selbstkonsistenten Bandstrukturrechnungen zu testen.

Die "first principles" Rechnungen für den paramagnetischen Zustand kann man als gut fundiert ansehen, etwa wegen der guten Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment bei den Edelmetallen.

Da man aber, wie erwähnt, die Ursache für das ferromagnetische Verhalten einiger d-Metalle nicht genau kennt, wird man mit einer Modellrechnung an dieser Stelle einsetzen. Von Bross [25] wurde ein Interpolationsverfahren vorgeschlagen, das in seiner Grundidee - Existenz von lokalisierten verallgemeinerten Wannierfunktionen - sehr gut zu dem von Hubbard [10] vorgeschlagenen Mechanismus der intraatomaren Coulombwechselwirkung paßt. Im Gegensatz zu den Interpolationsverfahren von Müller und Hodges et al. werden bei diesem Verfahren nicht die Ansatzfunktionen, sondern nur der Bandkomplex (siehe Kap.2.1) vorgegeben.

In der vorliegenden Arbeit wird nun versucht, ausgehend von einer paramagnetischen Bandstruktur [20], durch Hinzunahme der ferromagnetischen Korrelationswechselwirkung in Hubbardscher Form (Kap.3), zu einer realistischen ferromagnetischen Bandstruktur zu kommen.

In Kapitel 4 wird sich zeigen, wie das Zusammenspiel von Hubbard-Operator und verallgemeinerten Wannierfunktionen zu einem geschlossenen, mit erträglichem numerischen Aufwand berechenbaren Ausdruck für die dynamische transversale Spinsuszeptibilität führt.

1.1 ANMERKUNGEN UND HÄUFIG VORKOMMENDE SYMBOLE

Die Bezeichnungen von Symmetriepunkten und -linien in der Brillouinzone (BZ) folgen der BSW-Konvention [27].

Energien werden in Rydberg angegeben, reziproke Gittervektoren in Einheiten von $2\pi/a$.

Es bedeuten

a	Gitterkonstante (Ni : $3.52\text{\AA}$)
N	Anzahl der Elementarzellen
$\delta_{mm'}$	Kronecker-Delta
$\vec{R}$	Vektor des Ortsgitters
$n, \vec{k}, \sigma$	Bandindex, Wellenvektor, Spinindex
$\uparrow$	Majoritätsspin
$\downarrow$	Minoritätsspin
O_h	kubische Punktgruppe [28]

2. ZUM INTERPOLATIONSVERFAHREN

2.1 GRUNDLAGEN

Nach Bross [25] geht man bei der Interpolation einer "first principles" Bandstruktur folgendermaßen vor:

Um die in einigen hochsymmetrischen $\vec{k}$ -Punkten gegebenen g Energien $E_n(\vec{k})$ einer Bandgruppe zu interpolieren, suche man eine g -dimensionale Hamiltonmatrix $H(\vec{k})$, die diese Energien als Eigenwerte liefert

$$(2.1) \quad \sum_{\nu} H_{\mu\nu}(\vec{k}) U_{\nu n}(\vec{k}) = U_{\mu n}(\vec{k}) E_n(\vec{k}); \quad n=1, \dots, g.$$

Die Matrix H setze man in folgender parametrisierter Form an

$$(2.2) \quad H_{\mu\nu}(\vec{k}) = \sum_{\vec{R}} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{R}} \varepsilon_{\mu\nu}(\vec{R})$$

mit dem Gittervektor $\vec{R}$.

Im Punkt $\vec{k}=0$ seien die Energien durch die irreduziblen Darstellungen $\Gamma^{(i)}$ ($i=1, \dots, s$) der Punktgruppe G klassifiziert.

Die gruppentheoretischen Zusammenhangs- und Entartungsverhältnisse werden durch das folgende Transformationsverhalten festgelegt

$$(2.3) \quad H_{\mu\nu}(\alpha \vec{k}) = \sum_{S, S'} \Gamma_{\mu S}(\alpha) H_{S S'}(\vec{k}) \Gamma_{S' \nu}^{-1}(\alpha); \quad \alpha \in G$$

mit der direkten Summe

$$(2.4) \quad \Gamma(\alpha) = \bigoplus_{i=1}^s \Gamma^{(i)}(\alpha) = \begin{pmatrix} \Gamma^{(1)}(\alpha) & 0 & \dots \\ 0 & \Gamma^{(2)}(\alpha) & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}.$$

Das Transformationsverhalten (2.3) überträgt sich direkt auf die Matrix ξ .

Auf diese Weise bekommt man in den anderen $\vec{k}$ -Punkten der Brillouinzone (BZ) nur Energien, die sich nach solchen irreduziblen Darstellungen der Punktgruppe von $\vec{k}$ klassifizieren lassen, die bei der Ausreduktion von Γ auftreten. Eine Bandgruppe, die diesen Bedingungen genügt, wollen wir einen Bandkomplex (BK) nennen, dessen Charakteristikum also die gruppentheoretische Abgeschlossenheit ist.

Bei Metallen ist es nun i.a. nicht möglich, einen endlichen Bandkomplex zu finden, der den Bereich um die Fermienergie umschließt. Man hat also eine genügend große Bandgruppe zu wählen, um diese dann, durch Änderung der Zusammenhangsverhältnisse in einem nicht interessierenden Energiebereich, zu einem Bandkomplex zu machen. Die entsprechenden Überlegungen bei Nickel werden in Kap.5.1 erläutert.

Definiert man verallgemeinerte Wannierfunktionen (vWF) zum Index μ am Ort $\vec{R}$

$$a_{\mu}(\vec{r}-\vec{R}) = N^{-1/2} \sum_{\vec{R}} e^{-i\vec{R}\cdot\vec{R}} \varphi_{\mu\vec{R}}(\vec{r}) \quad (2.5)$$

$$\varphi_{\mu\vec{R}}(\vec{r}) = \sum_{n \in \text{BK}} U_{\mu n}^*(\vec{R}) \psi_{n\vec{R}}(\vec{r})$$

mit den Eigenfunktionen $\psi_{n\vec{k}}$ zum Energieeigenwert $E_n(\vec{k})$, so gilt

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\mu\nu}(\vec{R}-\vec{R}') &= \int a_{\mu}^*(\vec{r}-\vec{R}) \mathcal{H} a_{\nu}(\vec{r}-\vec{R}') d\tau \\ (2.6) \quad &\equiv (\mu\vec{R} | \mathcal{H} | \nu\vec{R}'). \end{aligned}$$

Falls nun die vWF gut lokalisiert sind, kann man hoffen, in Gleichung (2.2) mit wenigen $\vec{R}$ auszukommen, um die gegebenen Energien gut zu interpolieren.

2.2 AUFBEREITUNG FÜR EINE NUMERISCHE BEHANDLUNG

Im folgenden beschränken wir uns auf symmorph kubische Raumgruppen, also auf O_h^1 , O_h^5 , O_h^9 [26].

Zur Vereinfachung der Schreibweise führen wir das Kroneckerprodukt zweier Matrizen A, B auf die folgende Weise ein [28]

$$(2.7) \quad (A \otimes B)_{\nu\mu; \sigma\tau} = A_{\nu\sigma} B_{\mu\tau}.$$

Durch die direkte Summe (2.4) ist eine natürliche Blockstruktur der Matrizen $H(\vec{k})$ und $E(\vec{R})$ gegeben

$$(2.8) \quad E = (E_{\nu\mu}^{(i,j)}) = \left(\begin{array}{c|c|c} E^{(1,1)} & E^{(1,2)} & \dots \\ \hline E^{(2,1)} & E^{(2,2)} & \dots \\ \hline \dots & \dots & \dots \end{array} \right),$$

die es gestattet, das Transformationsverhalten (2.3) umzuschreiben ($\alpha \in O_h$, O_h kubische Punktgruppe)

$$(2.9) \quad E_{\nu\mu}^{(i,j)}(\alpha \vec{R}) = \sum_{\sigma\tau} [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)]_{\nu\mu; \sigma\tau} E_{\sigma\tau}^{(i,j)}(\vec{R}).$$

In naheliegender Matrixschreibweise lautet diese Relation

$$(2.10) \quad E^{(i,j)}(\alpha \vec{R}) = [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] \cdot E^{(i,j)}(\vec{R}).$$

Da wir in unserem Fall die Hamiltonmatrix reell wählen können, gilt (-1=Inversion)

$$\begin{aligned}
 \varepsilon^{(i,j)*}(\vec{R}) &= [\Gamma^{(i)}(-1) \otimes \Gamma^{(j)*}(-1)] \cdot \varepsilon^{(i,j)}(\vec{R}) \\
 (2.11) \qquad &= P(i) P(j) \varepsilon^{(i,j)}(\vec{R})
 \end{aligned}$$

mit

$$(2.12) \quad \Gamma^{(i)}(-1) = P(i) \cdot 1 \quad (1 = \text{Einheitsmatrix}),$$

d.h.

$$\begin{aligned}
 \varepsilon^{(i,i)} &\text{ ist reell} \\
 (2.13) \quad \varepsilon^{(i,j)} &(i \neq j) \text{ ist reell oder rein imaginär.}
 \end{aligned}$$

Sei nun die Zerlegung von O_h in Linksnebenklassen nach der Gruppe $G_{\vec{R}}$ von $\vec{R}$ (d.i. $G_{\vec{R}} = \{\alpha \in O_h \mid \alpha \vec{R} = \vec{R}\}$) gegeben [28]

$$(2.14) \quad G_{\vec{R}}, \beta_1 G_{\vec{R}}, \beta_2 G_{\vec{R}}, \dots$$

Die Elemente β_i wollen wir "Sternoperationen" zu $\vec{R}$ nennen. Jedes Element $\alpha \in O_h$ läßt sich dann schreiben

$$(2.15) \quad \alpha = \beta_i \gamma \quad ; \quad \gamma \in G_{\vec{R}}.$$

Damit erhalten wir für die Blöcke $H^{(i,j)}$ der H-Matrix

$$(2.16) \quad H^{(i,j)}(\vec{R}) = \sum_{\langle \vec{R} \rangle} S^{(i,j)}(\vec{R}, \vec{R}) \cdot \varepsilon^{(i,j)}(\vec{R})$$

mit folgender Abkürzung

$$(2.17) \quad S^{(i,j)}(\vec{R}, \vec{R}) = \frac{1}{\text{ord}(G_{\vec{R}})} \sum_{\alpha \in O_h} [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] e^{-i\vec{R} \cdot (\alpha \vec{R})}.$$

Dabei ist $\text{Ord}(G_{\vec{R}})$ die Ordnung der Gruppe $G_{\vec{R}}$. Die Summation in (2.16) läuft nur über Repräsentanten $\langle \vec{R} \rangle$ der Schalen $S_{\langle \vec{R} \rangle}$ ($S_{\langle \vec{R} \rangle} := \{ \vec{R}' \mid \vec{R}' = \beta_i \langle \vec{R} \rangle \}$).

Die Anpassung der Parameter $\xi(\vec{R})$ an die gegebene Bandstruktur geschieht durch Minimierung des folgenden Ausdruckes

$$(2.18) \quad \sigma^2 = \sum_{\nu, \mu, \vec{R}} g(\vec{R}) \left| \bar{H}_{\mu\nu}(\vec{R}) - \sum_{\vec{R}} \xi_{\mu\nu}(\vec{R}) e^{i\vec{R} \cdot \vec{R}} \right|^2$$

mit den Gewichtungsfaktoren $g(\vec{k})$. Die $\vec{k}$ -Summe läuft über die Punkte, in denen die Energien $E_n^0(\vec{k})$ bekannt sind. Die Matrixelemente $\bar{H}(\vec{k})_{\mu\nu}$ berechnen sich im Sinne eines Iterationsverfahrens aus den Energien $E_n^0(\vec{k})$ und den Eigenvektoren $U_{\nu n}(\vec{k})$ (Gl.(2.1)) des vorhergehenden Iterationsschrittes zu

$$(2.19) \quad \bar{H}_{\mu\nu}(\vec{R}) = \sum_n U_{\mu n}(\vec{R}) E_n^0(\vec{R}) U_{\nu n}^*(\vec{R}).$$

Die Minimierung ergibt folgende lineare Gleichungssysteme

$$(2.20) \quad \sum_{\langle \vec{R}' \rangle} M^{(i,j)}(\vec{R}, \vec{R}') \cdot \xi^{(i,j)}(\vec{R}') = N^{(i,j)}(\vec{R})$$

mit den Abkürzungen

$$(2.21) \quad M^{(i,j)}(\vec{R}, \vec{R}') = \sum_{\vec{R}} g(\vec{R}) S^{(i,j)\dagger}(\vec{R}, \vec{R}) \cdot S^{(i,j)}(\vec{R}, \vec{R}')$$

$$(2.22) \quad N^{(i,j)}(\vec{R}) = \sum_{\vec{R}} g(\vec{R}) S^{(i,j)\dagger}(\vec{R}, \vec{R}) \cdot \bar{H}^{(i,j)}(\vec{R}).$$

Das Transformationsverhalten aller vorkommenden Matrizen lautet (der Übersichtlichkeit wegen lassen wir die

Indexpaare (i, j) weg):

$$\begin{aligned}
 \varepsilon(\alpha \vec{R}) &= [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] \cdot \varepsilon(\vec{R}) \\
 H(\alpha \vec{R}) &= [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] \cdot H(\vec{R}) \\
 (2.23) \quad N(\alpha \vec{R}) &= [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] \cdot N(\vec{R}) \\
 S(\alpha \vec{R}, \alpha' \vec{R}') &= [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] \cdot S(\vec{R}, \vec{R}') \cdot [\Gamma^{(i)}(\alpha') \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha')]^{-1} \\
 M(\alpha \vec{R}, \alpha' \vec{R}') &= [\Gamma^{(i)}(\alpha) \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha)] \cdot M(\vec{R}, \vec{R}') [\Gamma^{(i)}(\alpha') \otimes \Gamma^{(j)*}(\alpha')]^{-1}
 \end{aligned}$$

Die Matrizen S und M transformieren sich also in den Zeilen- bzw. Spaltenindizes wie die Matrizen H oder ε .

Werden die irreduziblen Darstellungen $\Gamma^{(i)}$ der Gruppe O_h durch Matrizen $V^{(i)}$ nach den irreduziblen Darstellungen der relevanten Gruppen $G_{\vec{R}}^+$ oder $G_{\vec{K}}^+$ ausreduziert^(x), dann sei

$$\begin{aligned}
 \tilde{\varepsilon}^{(i,j)}(\vec{R}) &= V^{(i)}(G_{\vec{R}}) \cdot \varepsilon^{(i,j)}(\vec{R}) \cdot V^{(j)*}(G_{\vec{R}}) \\
 (2.24) \quad \tilde{H}^{(i,j)}(\vec{R}) &= V^{(i)}(G_{\vec{R}}) \cdot H^{(i,j)}(\vec{R}) \cdot V^{(j)*}(G_{\vec{R}})
 \end{aligned}$$

mit analogen Relationen für $\tilde{M}$, $\tilde{S}$.

Mit dem Wigner-Theorem (Anhang 1) kennt man damit die gruppentheoretisch unabhängigen Parameter. Die komplette H-Matrix läßt sich dann auf Blockdiagonalgestalt bringen, wobei die Blöcke durch die irreduziblen Darstellungen der Gruppe $G_{\vec{R}}^+$ gekennzeichnet sind. Auf diese Weise lassen sich gegebene und interpolierte Energien $E_n^0(\vec{K})$ bzw. $E_n(\vec{k})$ bei der Iteration (2.19) zuordnen.

(x) Die Matrizen V wurden nach dem Verfahren von Koster [29] gewonnen.

Die übersichtliche Gestalt der ausreduzierten Matrizen (2.24) führt zu einer gut programmierbaren Form des Interpolationsverfahrens.

Das Algolprogramm wurde so allgemein erstellt, daß nur die Angabe der direkten Summe (2.4) und der gegebenen Energien $E_n^0(\vec{k})$ erforderlich ist.

Das gewonnene Programm ließ sich durch kleine Modifikationen auch für die Interpolation von Tensoroperatoren höherer Stufe verwenden, z.B. für den Impulsoperator $\vec{p}$.

3. ERWEITERUNG DES INTERPOLATIONSVERFAHRENS ZU EINEM MODELL FÜR DEN FERROMAGNETISCHEN FALL

3.1 VORBETRACHTUNG

Für d-Übergangsmetalle mit flächenzentriertem Gitter ist der folgende Verlauf der Energiebänder in der Nähe der Fermienergie charakteristisch (Abb.1). Ein breites sp-Leitungsband wird von einem schmalen d-Band-Komplex gekreuzt, dessen Lage relativ zu Fermienergie und sp-Band für die verschiedenen Übergangsmetalle charakteristisch ist [30] .

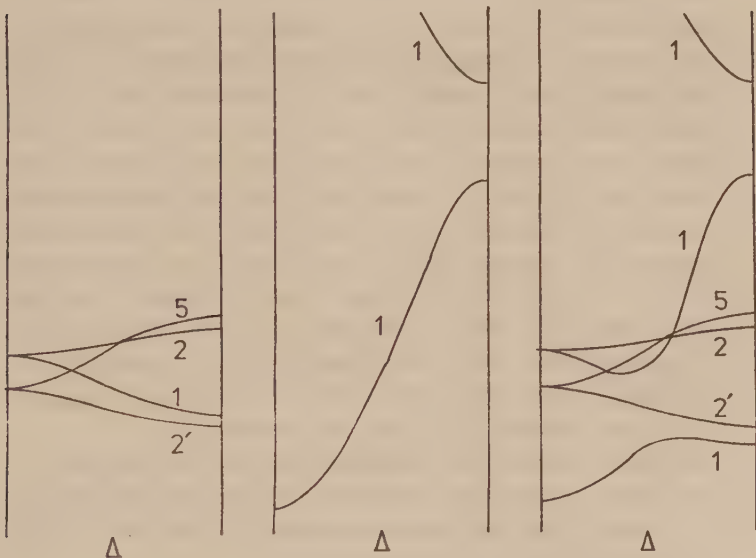


Abb.1 Energiebänder (schematisch) von flächenzentrierten Übergangsmetallen entlang der Δ -Richtung vor und nach der Hybridisierung [30]

Für Elektronen in schmalen d-Bändern ist die Wechselwirkungsenergie infolge der Coulombwechselwirkung mit der kinetischen Energie vergleichbar. Daher ist für die Bewegung solcher Elektronen die Berücksichtigung der individuellen Wechselwirkung sehr wichtig.

Außerdem muß die atomistische Struktur des Festkörpers (Ionenrümpfe) berücksichtigt werden. Es bietet sich deshalb an, die Untersuchungen in der Wannierdarstellung durchzuführen. Mehrere Autoren [10,31,32] haben versucht, auf diese Weise zu einem besseren Verständnis des Verhaltens der Elektronen in schmalen Bändern zu kommen.

Die Überlegungen von Hubbard [10], dessen Modell wir unseren weiteren Untersuchungen zugrunde legen werden, sind folgende:

Betrachten wir zunächst ein teilweise aufgefülltes d-Band von nicht wechselwirkenden Elektronen. Da diese sich durch den gesamten Kristall bewegen, ist der Gesamtspin aller Elektronen an einem Ion - kurz Spin eines Ions genannt - eine Größe, die mit der Zeit in Betrag und Richtung fluktuiert. Ist aber die Wechselwirkungsenergie groß genug gegenüber der kinetischen Energie, so bewegen sich nach Hubbard die Elektronen in korrelierter Weise so durch den Kristall, daß die Spins der Ionen über einen längeren Zeitraum erhalten bleiben, obwohl die Elektronen dauernd "wechseln". In diesem Sinne kann man also den Ionen einen Spin zuordnen. Brandow [34] hat den Versuch einer "Itinerant-Localized" Theorie des Ferromagnetismus der Übergangsmetalle unternommen, d.h. einer Theorie, die sowohl Züge des Heisenbergmodells als auch Züge des Bandmodells in sich vereinigt.

Nach Sokoloff [35] sorgt der oben beschriebene Effekt dafür, daß "lokale magnetische" Momente sogar bis über die Curietemperatur T_c hinaus existieren und bei T_c nur die Fernordnung verschwindet. Majoritäts- (Minoritäts-) Elektronen sind dann solche, die sich bevorzugt dort aufhalten, wo die Spindichte parallel (antiparallel) zu ihrem eigenen Spin ist. Insbesondere fallen danach an der Curietemperatur die Energien für beide nicht zusammen, wie Slater 1936 [4,9] vermutete. Er widerrief diese Vermutung im Jahre 1968 [36].

In unseren späteren Überlegungen werden wir uns auf eine einfache Klasse von Eigenlösungen des Hubbard-Hamiltonoperators beschränken, die zu einem gesättigten ferromagnetischen Zustand führt.

3.2 ZUM HUBBARD - OPERATOR

Wir betrachten zunächst der Einfachheit halber ein hypothetisches teilweise aufgefülltes flaches s-Band. Der Hamiltonoperator (ohne Bandindex) lautet dann in 2. Quantisierung

$$(3.1) \quad \mathcal{H} = \sum_{\vec{R}, \sigma} \epsilon_{\vec{R}} c_{\vec{R}\sigma}^+ c_{\vec{R}\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\vec{R}, \vec{R}', \vec{q} \\ \sigma, \sigma'}} V(\vec{R}+\vec{q}, \vec{R}'-\vec{q}, \vec{R}', \vec{R}) \cdot c_{\vec{R}+\vec{q}\sigma}^+ c_{\vec{R}'-\vec{q}\sigma'}^+ c_{\vec{R}'\sigma'} c_{\vec{R}\sigma}.$$

Die $c_{\vec{k}\sigma}^+$ bzw. $c_{\vec{k}\sigma}$ sind dabei die Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperatoren im Blochzustand $\vec{k}$ mit Spin σ , V ist in bekannter Weise das Matricelement des Coulombpotentials mit Blochfunktionen $\psi_{\vec{k}}(\vec{r})$. Definieren wir Wannierfunktionen (WF) - durch Spezialisierung von (2.5) auf ein Band - und den zugehörigen Erzeugungsoperator gemäß

$$(3.2) \quad a(\vec{r}-\vec{R}_e) = N^{-1/2} \sum_{\vec{R}} e^{-i\vec{R} \cdot \vec{R}_e} \psi_{\vec{R}}(\vec{r})$$

$$c_{e,\sigma}^+ = N^{-1/2} \sum_{\vec{R}} e^{-i\vec{R} \cdot \vec{R}_e} c_{\vec{R}\sigma}^+$$

und machen bei der Berechnung des Matricelementes $V(\vec{k}+\vec{q}, \vec{k}'-\vec{q}, \vec{k}', \vec{k})$ die Einzentrennäherung^(x), so bleibt

$$(3.3) \quad \mathcal{H} = \sum_{\vec{R}, \sigma} \epsilon_{\vec{R}} c_{\vec{R}\sigma}^+ c_{\vec{R}\sigma} + \frac{I}{2N} \sum_{\substack{\vec{R}, \vec{R}', \vec{q} \\ \sigma, \sigma'}} c_{\vec{R}+\vec{q}\sigma}^+ c_{\vec{R}'-\vec{q}\sigma'}^+ c_{\vec{R}'\sigma'} c_{\vec{R}\sigma}$$

(x) D.h. wir nehmen nur den Term mit, bei dem alle vier WF am gleichen Ort $\vec{R}_1$ lokalisiert sind.

mit

$$(3.4) \quad I = e^2 \int |a(\vec{r})|^2 \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} |a(\vec{r}')|^2 d\tau d\tau'$$

oder

$$(3.5) \quad \mathcal{H} = \sum_{ee'\sigma} \varepsilon(\vec{R}_e - \vec{R}_{e'}) c_{e\sigma}^\dagger c_{e'\sigma} + \frac{I}{2} \sum_{e\sigma} n_{e\sigma} n_{e-\sigma}$$

mit

$$n_{e\sigma} = c_{e\sigma}^\dagger c_{e\sigma}.$$

Es bleibt nur eine Wechselwirkung, falls die beiden Elektronen mit antiparallelem Spin im gleichen Wannierzustand sind. Um zu einem realistischen Modell zu kommen, muß I durch ein kleineres I_{eff} ersetzt werden, wodurch die Abschirmung der intraatomaren Coulombwechselwirkung berücksichtigt wird. Die Größe von I_{eff} bleibt aber umstritten [3, 10-12].

3.3 EIN MODELL FÜR FERROMAGNETISCHES NICKEL

Unser Ziel ist die Bestimmung einer ferromagnetischen Modellhamiltonmatrix $H_{\mu\nu}^{\sigma}(\vec{k})$, und zwar ausgehend von der paramagnetischen Matrix (2.2).

Wir nehmen an, daß die ferromagnetischen Eigenfunktionen $\psi_{\vec{n}\vec{k}\sigma}(\vec{r})$ sich auf folgende Weise durch die $\varphi_{\mu\vec{k}}(\vec{r})$ (2.5) ausdrücken lassen

$$(3.6) \quad \psi_{\vec{n}\vec{k}\sigma}(\vec{r}) = \sum_{\mu} U_{\mu n}(\vec{k}, \sigma) \varphi_{\mu\vec{k}}(\vec{r}).$$

Dabei ist U die Matrix der Eigenvektoren der Gleichung

$$(3.7) \quad \sum_{\nu} H_{\mu\nu}^{\sigma}(\vec{k}) U_{\nu n}(\vec{k}, \sigma) = U_{\mu n}(\vec{k}, \sigma) E_n(\vec{k}, \sigma); \quad \sigma = \uparrow, \downarrow$$

Für die Erzeugungsoperatoren gelten die Relationen

$$(3.8) \quad \begin{aligned} C_{\ell\mu\sigma}^{\dagger} &= N^{-1/2} \sum_{\vec{R}} e^{-i\vec{R}\cdot\vec{R}_\ell} C_{\vec{R}\mu\sigma}^{\dagger} \\ C_{\vec{R}\mu\sigma}^{\dagger} &= \sum_{n \in \mathcal{BK}} U_{\mu n}^*(\vec{R}, \sigma) C_{n\vec{R}\sigma}^{\dagger}. \end{aligned}$$

Den in Kap.3.1 benutzten Begriffen "d-Zustände", "sp-Zustände" geben wir unter Verwendung des Index μ folgenden Sinn:

"sp-artig" für $\mu \in \{1, \dots, 4\}$

"d-artig" für $\mu \in \{5, \dots, 9\}$,

da wir in Kap.5.1 einen 9-Band-Komplex durch die direkte Summe (siehe (2.4))

$$(3.9) \quad \Gamma = \Gamma_1 \oplus \Gamma_{15} \oplus \Gamma_{12} \oplus \Gamma_{25}'$$

festlegen.

Die naheliegende Verallgemeinerung des 1-Band-Hamiltonoperators (3.5) auf einen Bandkomplex lautet in Analogie zu Hodges et al. [21]

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 \\ \mathcal{H}_1 &= U_{\text{eff}}^{d-d} \sum_{\substack{\ell\mu \\ \mu \text{ d-artig}}} n_{\ell\mu\uparrow} n_{\ell\mu\downarrow} + U_{\text{eff}}'^{d-d} \sum_{\substack{\ell\sigma\sigma' \\ \mu \neq \mu' \\ \mu \text{ d-artig}}} n_{\ell\mu\sigma} n_{\ell\mu'\sigma'} \\ &\quad - J_{\text{eff}} \sum_{\substack{\ell\sigma \\ \mu \neq \mu'}} n_{\ell\mu\sigma} n_{\ell\mu'\sigma} . \end{aligned} \quad (3.10)$$

Der erste Term beschreibt die intraatomare Coulomb-abstoßung zwischen zwei d-Elektronen mit antiparallelem Spin im selben verallgemeinerten Wannierzustand μ am gleichen Ort $\vec{R}_1$. Der zweite Term beschreibt die Coulombwechselwirkung zwischen d-Elektronen in verschiedenen verallgemeinerten Wannierzuständen μ, μ' am selben Ort $\vec{R}_1$. Der letzte Term schließlich beschreibt die Austauschwechselwirkung zwischen Elektronen am selben Ort $\vec{R}_1$. Hodges et al. zeigen nun, daß es für Nickel in qualitativer Hinsicht genügt, nur die Terme mit U_{eff}^{d-d} und $J_{\text{eff}}^{\text{sp-d}}$ zu berücksichtigen. In quantitativer Hinsicht werden U_{eff}^{d-d} und $J_{\text{eff}}^{\text{sp-d}}$ sowieso als anzupassende Parameter betrachtet.

Man gelangt zu einem Einteilchenoperator, indem man e i n e n Teilchenzahloperator durch den Erwartungswert ersetzt. Im homogenen Fall ist $\langle n_{\ell\mu\sigma} \rangle$ von 1 unabhängig und man erhält

$$\begin{aligned}
 \langle n_{\mu\sigma} \rangle &\equiv \langle n_{\mu\sigma} \rangle = \\
 (3.11) \quad &= N^{-1} \sum_{\substack{\mu\mu' \\ \vec{k}}} u_{\mu\mu}(\vec{k}, \sigma) u_{\mu\mu'}^*(\vec{k}, \sigma) \cdot \langle c_{\mu\vec{k}\sigma}^+ c_{\mu'\vec{k}\sigma} \rangle \\
 &= N^{-1} \sum_{\mu\vec{k}} |u_{\mu\mu}(\vec{k}, \sigma)|^2 f_{\mu\vec{k}\sigma}
 \end{aligned}$$

mit der Besetzungszahl $f_{\vec{k}\sigma}$.

Die gesuchte Modellhamiltonmatrix hat damit folgende Gestalt

$$\begin{aligned}
 H_{\mu\mu'}^{\sigma} &= H_{\mu\mu'}^{\text{para}} + \left(u_{\text{eff}}^{\text{d-d}} \sum_{\mu}^{\text{d-artig}} (\langle n_{\mu-\sigma} \rangle^{\text{ferro}} - \langle n_{\mu} \rangle^{\text{para}}) \right. \\
 (3.12) \quad &\quad \left. - J_{\text{eff}}^{\text{sp-d}} \sum_{\substack{\mu'' \\ \text{d-artig}}}^{\text{sp-artig}} (\langle n_{\mu''\sigma} \rangle^{\text{ferro}} - \langle n_{\mu''} \rangle^{\text{para}}) \right) \delta_{\mu\mu'}
 \end{aligned}$$

H^{para} ist die paramagnetische Matrix (2.2) und $\langle n_{\mu} \rangle^{\text{para}}$ sind die paramagnetischen Analoga zu Relation (3.11).

Der Zusatzterm ist diagonal. Die Matrix (3.12) hat die volle kubische Symmetrie

$$(3.13) \quad H^{\sigma}(\alpha \vec{k}) = \Gamma(\alpha) \cdot H^{\sigma}(\vec{k}) \cdot \Gamma^{-1}(\alpha) .$$

Für $\sigma = \uparrow$ und $\sigma = \downarrow$ liefert (3.12) zwei Eigenwertprobleme für die beiden Spinrichtungen, die nur über $\langle n_{\mu-\sigma} \rangle^{\text{ferro}}$ miteinander gekoppelt sind.

Die Spin-Bahn-Kopplung wurde analog zum Vorgehen anderer Autoren [21,37] in parametrisierter Form H^{so} [38] berücksichtigt. Die vollständige Matrix

$$(3.14) \quad H = [H^{\uparrow} \oplus H^{\downarrow}] + H^{so}$$

hat die doppelte Dimension und ist komplex. H hat außerdem nicht mehr die volle kubische Symmetrie [39]. Testrechnungen ergaben für Nickel Energieänderungen, die klein gegenüber der ferromagnetischen Spinaufspaltung sind. Deshalb wurde die Spin-Bahn-Kopplung in den weiteren Rechnungen nicht berücksichtigt. Allerdings kann die Topologie der Fermifläche entscheidend geändert werden [40].

4. ZUR TRANSVERSALEN DYNAMISCHEN SPINSUSZEPTIBILITÄT χ^{-+}

4.1 BEDEUTUNG, DEFINITION

Die transversale dynamische Spinsuszeptibilität χ^{-+} steht in enger Beziehung zu den inelastischen Neutronenstreuquerschnitten in ferromagnetischen Übergangsmetallen [41-43]. Polstellen in der komplexen ω -Ebene zeigen die Existenz von (gedämpften) kollektiven Anregungen an: Magnonen [44].

Die z-Achse sei Quantisierungsrichtung für den Spin. Für χ^{-+} findet man in der linearen Antworttheorie [z.B.45]:

$$(4.1) \quad \chi^{-+}(\vec{q}, \omega) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} \frac{i}{\hbar} (g\mu_B)^2 \int_0^{\infty} e^{i\omega t - \epsilon t} \langle [S^-(\vec{q}, t), S^+(\vec{q}, 0)] \rangle dt$$

g : g-Faktor

μ_B Bohrsches Magneton .

Dabei sind S^+ und S^- auf die folgende Weise definiert

$$(4.2) \quad S^{\pm}(\vec{q}) = \int e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \underline{\psi}^{\pm}(\vec{r}) \frac{1}{2} (\underline{\sigma}_x \pm i \underline{\sigma}_y) \underline{\psi}(\vec{r}) d\tau$$

mit den Spinmatrizen $\underline{\sigma}_x, \underline{\sigma}_y$.

Mit dem Ansatz

$$(4.3) \quad \underline{\psi}_\sigma(\vec{r}) = \sum_{m, \vec{k}} \underline{\psi}_{m\vec{k}\sigma}(\vec{r}) c_{m\vec{k}\sigma}$$

für die Komponenten $\psi_\sigma(\vec{r})$ des Spinors $\underline{\psi}(\vec{r})$ ergibt sich

$$(4.4) \quad S^-(\vec{q}) = \sum_{\substack{m, m' \\ \vec{k}}} (m \vec{k} \downarrow | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} | m' \vec{k} + \vec{q} \uparrow) C_{m \vec{k} \downarrow}^+ C_{m' \vec{k} + \vec{q} \uparrow}$$

$$(4.5) \quad S^+(-\vec{q}) = [S^-(\vec{q})]^+ \\ = \sum_{m, m', \vec{k}} (m \vec{k} + \vec{q} \uparrow | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} | m' \vec{k} \downarrow) C_{m \vec{k} + \vec{q} \uparrow}^+ C_{m' \vec{k} \downarrow}.$$

Definiert man in üblicher Weise eine retardierte Greenfunktion [46]

$$(4.6) \quad G^-(\vec{q}, t) = -i \theta(t) \langle [S^-(\vec{q}, t), S^+(-\vec{q}, 0)] \rangle,$$

so hat man folgenden Zusammenhang

$$(4.7) \quad \chi^-(\vec{q}, \omega) = - \frac{(q \mu_B)^2}{\hbar} G^-(\vec{q}, \omega).$$

Mit (4.4) erhält man schließlich

$$(4.8) \quad G^-(\vec{q}, t) = \sum_{\substack{m, m' \\ \vec{k}}} (m \vec{k} \downarrow | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} | m' \vec{k} + \vec{q} \uparrow) G(m \vec{k}, m' \vec{k} + \vec{q}; t)$$

mit

$$(4.9) \quad G(m \vec{k}, m' \vec{k} + \vec{q}; t) = -i \theta(t) \langle [C_{m \vec{k} \downarrow}^+(t) C_{m' \vec{k} + \vec{q} \uparrow}(t), S^+(-\vec{q}, 0)] \rangle.$$

4.2 DIE BEWEGUNGSGLEICHUNG IN RPA - NÄHERUNG

Als Näherung für den Hamiltonoperator nehmen wir den Hubbard-Operator ohne den Term mit $J_{\text{eff}}^{\text{sp-d}}$. Diese Vernachlässigung ist gerechtfertigt, da der Effekt numerisch von untergeordneter Bedeutung ist.

In der $\mu\vec{k}$ -Darstellung lautet der Hubbard-Operator

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H} &= \sum_{\substack{\mu, \mu' \\ \vec{k}, \vec{k}'}} H_{\mu\mu'}^0(\vec{k}) c_{\mu\vec{k}\sigma}^+ c_{\mu'\vec{k}'\sigma} \\
 (4.10) \quad &+ \frac{1}{2} \frac{U_{\text{eff}}^{\text{a-d}}}{N} \sum_{\substack{\vec{k}, \vec{p}, \vec{k}' \\ \mu, \sigma}} c_{\mu\vec{k}\sigma}^+ c_{\mu\vec{p}+\vec{k},-\sigma}^+ c_{\mu\vec{p},-\sigma} c_{\mu\vec{k}+\vec{k}\sigma} \\
 &\equiv \mathcal{H}^o + \mathcal{H}^c.
 \end{aligned}$$

Transformiert man auch $G(n\vec{k}, m\vec{k}+\vec{q}; t)$ in die $\mu\vec{k}$ -Darstellung

$$(4.11) \quad G(\mu\vec{k}, \mu'\vec{k}+\vec{q}; t) = -i \Theta(t) \langle [c_{\mu\vec{k}\sigma}^+(t) c_{\mu'\vec{k}+\vec{q}\sigma}(t), S^+(-\vec{q}, 0)] \rangle,$$

so gilt folgende Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G(\mu\vec{k}, \mu'\vec{k}+\vec{q}; t) &= \hbar \delta(t) \langle [c_{\mu\vec{k}\sigma}^+ c_{\mu'\vec{k}+\vec{q}\sigma}, S^+(-\vec{q}, 0)] \rangle \\
 (4.12) \quad &+ i \Theta(t) \langle [[\mathcal{H}^o, c_{\mu\vec{k}\sigma}^+(t) c_{\mu'\vec{k}+\vec{q}\sigma}(t)], S^+(-\vec{q}, 0)] \rangle \\
 &+ i \Theta(t) \langle [[\mathcal{H}^c, c_{\mu\vec{k}\sigma}^+(t) c_{\mu'\vec{k}+\vec{q}\sigma}(t)], S^+(-\vec{q}, 0)] \rangle.
 \end{aligned}$$

Die beiden ersten Terme der rechten Seite von (4.12) werden ohne Näherungen ausgewertet. Zur Reduktion des dritten Terms wird die RPA-Näherung verwendet, d.h.

$$c_1^+ c_2^+ c_3 c_4 \stackrel{\text{ers}}{=} \langle c_1^+ c_4 \rangle c_2^+ c_3 - \langle c_1^+ c_3 \rangle c_2^+ c_4 \\ + \langle c_2^+ c_3 \rangle c_1^+ c_4 - \langle c_2^+ c_4 \rangle c_1^+ c_3 .$$

Damit erhält die Bewegungsgleichung (4.12) folgende Gestalt

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G(\mu \vec{k}, \tilde{\mu} \vec{k} + \vec{q}; t) = \\ - \hbar \delta(t) \sum_{\mu'} (\mu' \vec{k} + \vec{q} | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} | \mu \vec{k}) \langle c_{\mu' \vec{k} + \vec{q}}^+ c_{\tilde{\mu} \vec{k} + \vec{q}} \rangle \\ + \hbar \delta(t) \sum_{\mu'} (\tilde{\mu} \vec{k} + \vec{q} | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} | \mu' \vec{k}) \langle c_{\mu \vec{k}}^+ c_{\mu' \vec{k}} \rangle \\ (4.13) + \sum_{\mu'} \left(H_{\tilde{\mu} \mu'}^0(\vec{k} + \vec{q}) + \mathcal{U}_{\text{eff}} \langle n_{\tilde{\mu}} \rangle \delta_{\tilde{\mu}}^{\text{d-artig}} \delta_{\mu'} \right) G(\mu \vec{k}, \mu' \vec{k} + \vec{q}; t) \\ - \sum_{\mu'} \left(H_{\mu' \mu}^0(\vec{k}) + \mathcal{U}_{\text{eff}} \langle n_{\mu} \rangle \delta_{\mu}^{\text{d-artig}} \delta_{\mu'} \right) G(\mu' \vec{k}, \tilde{\mu} \vec{k} + \vec{q}; t) \\ - \frac{\mathcal{U}_{\text{eff}}}{N} \left[\langle c_{\mu \vec{k}}^+ c_{\tilde{\mu} \vec{k}} \rangle \delta_{\tilde{\mu}}^{\text{d-artig}} \sum_{\tilde{k}'} G(\tilde{\mu} \tilde{k}', \tilde{\mu} \tilde{k}' + \vec{q}; t) \right. \\ \left. - \langle c_{\mu \vec{k} + \vec{q}}^+ c_{\tilde{\mu} \vec{k} + \vec{q}} \rangle \delta_{\mu}^{\text{d-artig}} \sum_{\tilde{k}'} G(\mu \tilde{k}', \mu \tilde{k}' + \vec{q}; t) \right] .$$

Hierbei wurden die Relationen

$$(4.14) \quad \langle c_{\mu \vec{k} \sigma}^+ c_{\mu' \vec{k}' \sigma'} \rangle = f_{\mu \vec{k} \sigma} \delta_{\mu \mu'} \delta_{\vec{k} \vec{k}'} \delta_{\sigma \sigma'}$$

$$(4.15) \quad \langle c_{\mu \vec{k} \sigma}^+ c_{\mu' \vec{k}' \sigma'} \rangle = \delta_{\sigma \sigma'} \delta_{\vec{k} \vec{k}'} \sum_{\tilde{\mu}} \mathcal{U}_{\mu \mu'}^*(\vec{k}, \sigma) \mathcal{U}_{\tilde{\mu} \mu}(\vec{k}', \sigma) f_{\mu \vec{k} \sigma}$$

verwendet.

Der Spezialfall $\mu' = \mu$ ergibt (3.9):

$$(4.16) \quad \langle n_{\mu\sigma} \rangle = N^{-1} \sum_{\vec{k}} \langle c_{\mu\vec{k}\sigma}^+ c_{\mu\vec{k}\sigma} \rangle \\ = N^{-1} \sum_{\vec{k}} |U_{\mu\mu}(\vec{k}, \sigma)|^2 f_{\mu\vec{k}\sigma}.$$

Transformiert man nun (4.13) in die $\vec{n}\vec{k}$ -Darstellung zurück und bildet die komplexe Fouriertransformierte von G gemäß

$$(4.17) \quad G(z) = \int dt G(t) e^{izt},$$

so erhält man folgende Gleichung

$$(4.18) \quad [t_z - E_{\mu}(\vec{k}\downarrow) + E_{\mu}(\vec{k}+\vec{q}\uparrow)] G(\mu\vec{k}, \mu\vec{k}+\vec{q}; z) \\ = t_{\mu}(\mu\vec{k}+\vec{q}\uparrow | e^{+i\vec{q}\cdot\vec{r}} | \mu\vec{k}\downarrow) (f_{\mu\vec{k}+\vec{q}\uparrow} - f_{\mu\vec{k}\downarrow}) \\ - U_{\text{eff}}(f_{\mu\vec{k}+\vec{q}\uparrow} - f_{\mu\vec{k}\downarrow}) \frac{1}{N} \sum_{\mu'\mu''\vec{p}} \sum_{\mu}^{\text{d-artig}} \\ U_{\mu\mu}^*(\vec{k}+\vec{q}\uparrow) U_{\mu\mu}(\vec{k}\downarrow) U_{\mu\mu'}^*(\vec{p}\downarrow) U_{\mu\mu''}(\vec{p}+\vec{q}\uparrow) G(\mu'\vec{p}, \mu''\vec{p}+\vec{q}; z).$$

Dies ist eine ähnliche Gleichung wie bei Cooke [43]. Unsere Herleitung geht aber konsequent vom Hubbard-Operator aus. Außerdem haben wir eine andere Definition der Energien $E_{\mu}(\vec{k})$ bzw. $E_{\mu}(\vec{k}+\vec{q}\uparrow)$, die durch Diagonalisierung von $H_{\mu\mu}^{\sigma}$ (Gl. (3.10)) gewonnen werden. Darüberhinaus sind die Matrizen U spinabhängig.

4.3 WEITERE NÄHERUNGEN

Für das $e^{i\vec{q}\vec{r}}$ -Matrizelement in den Gleichungen (4.18) und (4.8) kann man schreiben

$$(4.19) \quad (\mu \vec{R} + \vec{q} \uparrow | e^{i\vec{q}\vec{r}} | \mu \vec{R} \downarrow) = \\ = \sum_{\nu \mu} \mathcal{U}_{\mu\mu}^*(\vec{R} + \vec{q} \uparrow) \mathcal{U}_{\nu\mu}(\vec{R} \downarrow) (\mu \vec{R} + \vec{q} | e^{i\vec{q}\vec{r}} | \nu \vec{R}).$$

Nach Lowde und Windsor [42] ist der Beitrag der sp-artigen Zustände zur Suszeptibilität von Nickel klein. Wir beschränken also die Doppelsumme in (4.19) auf μ, ν d-artig. Deshalb sind alle im folgenden auftretenden μ -Summen über μ d-artig zu nehmen.

Mit der Annahme der starken Lokalisierung der vWF - zumindest für d-artige - gilt:

$$(4.20a) \quad (\mu \vec{R} + \vec{q} \uparrow | e^{i\vec{q}\vec{r}} | \mu \vec{R} \downarrow) = \sum_{\nu \mu} \mathcal{U}_{\mu\mu}^*(\vec{R} + \vec{q} \uparrow) \mathcal{U}_{\nu\mu}(\vec{R} \downarrow) F_{\mu\nu}(\vec{q})$$

mit dem Matrizelement

$$(4.20b) \quad F_{\mu\nu}(\vec{q}) = (\mu, \vec{R}=0 | e^{i\vec{q}\vec{r}} | \nu, \vec{R}'=0)$$

zwischen vWF am Ort $\vec{R}=0$.

Um einen geschlossenen Ausdruck für $G^{-+}(\vec{q}, z)$ zu erhalten, nehmen wir mit Lowde und Windsor [42] an, daß die Matrix $F_{\mu\nu}$ diagonal ist

$$(4.21) \quad F_{\mu\nu}(\vec{q}) = F(\vec{q}) \delta_{\mu\nu}.$$

In Kap.5.5 werden wir numerisch die Gültigkeit der Annahme (4.21) nachprüfen.

4.4 EIN GESCHLOSSENER AUSDRUCK FÜR χ^{-+} DISPERSIONSRELATION DER SPINWELLEN

Mit den Annahmen (4.20) und (4.21) kann die Gleichung (4.18) unter Beachtung von (4.8) für $G^{-+}(\vec{q}, z)$ gelöst werden

$$(4.22) \quad G^{-+}(\vec{q}, z) = \hbar |F(\vec{q})|^2 \sum_{\mu\nu\eta}^{d\text{-artig}} \left[1 + \mathcal{U}_{\text{eff}} \Gamma(\vec{q}, z) \right]_{\mu\nu}^{-1} \Gamma_{\nu\eta}(\vec{q}, z)$$

mit der Matrix

$$(4.23) \quad \Gamma_{\mu\nu}(\vec{q}, z) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \frac{\mathcal{U}_{\mu n}^*(\vec{k}\downarrow) \mathcal{U}_{\mu m}(\vec{k}+\vec{q}\uparrow) \mathcal{U}_{\nu m}^*(\vec{k}+\vec{q}\uparrow) \mathcal{U}_{\nu l}(\vec{k}\downarrow) \{f_{m\vec{k}+\vec{q}\uparrow} - f_{n\vec{k}\downarrow}\}}{\hbar z - E_m(\vec{k}\downarrow) + E_m(\vec{k}+\vec{q}\uparrow)}.$$

Die transversale dynamische Spinsuszeptibilität ergibt sich (siehe (4.7)) aus

$$(4.24) \quad \chi^{-+}(\vec{q}, \omega) = - \frac{(g\mu_B)^2}{\hbar} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0+} G^{-+}(\vec{q}, \omega + i\varepsilon).$$

Dies ist eine Verallgemeinerung des Resultates von Izuyama, Kim und Kubo [41] :

$$(4.25a) \quad \chi^{-+}(\vec{q}, \omega) \sim \frac{\Gamma(\vec{q}, \omega)}{1 + \nu \Gamma(\vec{q}, \omega)}$$

mit

$$(4.25b) \quad \Gamma(\vec{q}, \omega) = \sum_{\vec{k}} \frac{f_{\vec{k}+\vec{q}\uparrow} - f_{\vec{k}\downarrow}}{\hbar\omega - E(\vec{k}\downarrow) + E(\vec{k}+\vec{q}\uparrow)}$$

für einen Bandkomplex und verallgemeinerte Wannierfunktionen, wobei die Funktion Γ durch eine Matrix $\underline{\Gamma}$ ersetzt wird. Man beachte außerdem, daß über die Eigenvektoren $\mathcal{U}$ eine $\vec{k}, \vec{q}$ -Abhängigkeit des Coulomb-matrixelementes berücksichtigt wird.

Der Vorteil der Approximation der Matrixelemente in der Bewegungsgleichung (4.12) für G besteht darin, daß man die zur Berechnung von χ^{-+} nötige Information aus dem Interpolationsverfahren allein bekommt.

Die Magnonenenergien erhält man aus der Lage der Polstellen von $\text{Im } \chi^{-+}$ [44]. Wegen der Dämpfung durch Stoner-Anregungen [41], erhält man nur eine Spitze auf der reellen ω -Achse [47]. Wie man leicht an Hand der Gleichung (4.18) nachprüft, gilt

$$(4.26) \quad G^{-+}(\vec{q}=0, z) \sim \frac{1}{z} .$$

Das heißt aber, daß die Energie der Spinwellen gegen Null geht für $\vec{q} \rightarrow 0$.

5. ZUR NUMERIK - ERGEBNISSE

5.1 WAHL DES BANDKOMPLEXES

Von Meister [20] wurde die paramagnetische Bandstruktur von Nickel in 14 symmetrisch gelegenen $\vec{k}$ -Punkten mit dem MAPW-Verfahren [48,49] berechnet. Abb.2 zeigt diese Bandstruktur - ohne die tiefliegenden Rumpfbänder. Die Fermienergie ist eingezeichnet.

Ins Auge springt die Bandgruppe, die sich aus $\Gamma_1, \Gamma_{12}, \Gamma_{25}'$ zu entwickeln scheint. Diese ist aber kein Bandkomplex (s. Kap.2.1), da sich die Darstellungen X_4', L_2' nicht aus den obigen Darstellungen subduzieren lassen [28]. Darüber hinaus zeigt eine genauere Betrachtung, daß für das zwischen X_4' und L_2' verlaufende Band folgende Umbenennung nötig wäre:

$$X_4' \rightarrow X_1, L_2' \rightarrow L_1, Z_3 \rightarrow Z_1, Q_- \rightarrow Q_+.$$

Die letztgenannte Ersetzung würde die Zusammenhangsverhältnisse in der Nähe des L-Punktes verändern (s.Kap.5.3). Aus diesem Grunde wurde durch Hinzunahme von Γ_{15} eine Bandgruppe gewählt, die diesen Nachteil nicht hat.

Die nötigen Änderungen in den Zusammenhangsverhältnissen (s.Kap.2.1) sind in Abb.2 punktiert angedeutet; sie liegen oberhalb 2.0 Ry und damit ungefähr 1.5 Ry oberhalb der Fermienergie. Die nichtberücksichtigten Bänder wurden strichliert.

Damit wird der Bandkomplex durch die direkte Summe

$$(5.1) \quad \Gamma = \Gamma_1 \oplus \Gamma_{15} \oplus \Gamma_{12} \oplus \Gamma_{25}'$$

gruppentheoretisch festgelegt.

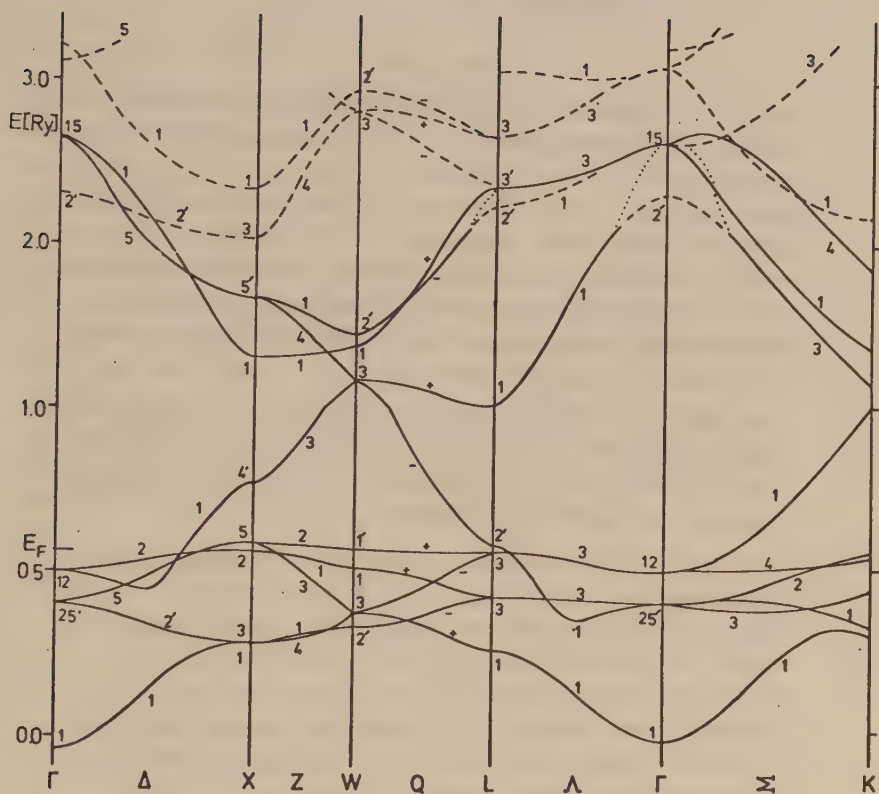


Abb.2 Paramagnetische Bandstruktur von Nickel nach Meister [20] für $\mathcal{L} = 12.3$.
Man beachte die Änderung des Energiemaßstabes ab 1.0 Ry!

5.2 INTERPOLATION DER PARAMAGNETISCHEN BANDSTRUKTUR

Mit den in Kap.2 und Kap.3 bereitgestellten Relationen wurde der Bandkomplex (5.1) interpoliert.

Zunächst wurde die topologisch richtige Struktur des Bandkomplexes durch Anpassung der Parameter zu $(0,0,0)$ und $(1,1,0)^{(x)}$ an die Energien in den hochsymmetrischen Punkten Γ, X, W, L, K (s.Abb.2) hergestellt. Dazu gibt man diesen $\vec{k}$ -Punkten ein hohes Gewicht über die Faktoren $g(\vec{k})$ (siehe(2.18)).

Die Zuordnung zwischen gerechneten und interpolierten Energien geschah durch gruppentheoretische Identifikation, die durch die ausreduzierte Form der H-Matrix (s.Kap.2.2) ermöglicht wird.

Details der Bandstruktur wurden durch Hinzunahme der Parameter zu $(2,0,0)$ und $(1,1,2)$ interpoliert. Der mittlere quadratische Fehler erniedrigte sich durch die Mitnahme von $(2,0,0)$ kaum. Die starken Einschränkungen wegen der hohen Symmetrie von $(2,0,0)$ durch die Forderung (2.23) bewirken diesen geringen Einfluß. Vermutlich könnte ein Weglassen dieser Parameter durch Änderung anderer kompensiert werden.

Erst die Hinzunahme von $(1,1,2)$ brachte eine spürbare Erniedrigung des Fehlers der Interpolation.

(x) Die Wahl der Repräsentanten der ersten vier Schalen (siehe (2.16)) lautet

$$\frac{a}{2}(0,0,0), \frac{a}{2}(1,1,0), \frac{a}{2}(2,0,0), \frac{a}{2}(1,1,2)$$

Im ersten Schritt - Anpassung der Parameter zu (0,0,0) und (1,1,0) - wurden 15 Iterationen durchgeführt.

Im zweiten und dritten Schritt - Hinzunahme von (2,0,0) bzw. (1,1,2) - deren jeweils 10.

Für den gesamten Bandkomplex wurde ein mittlerer quadratischer Fehler von $2.09 \cdot 10^{-2}$ Ry, für die Energien in einem Intervall von 0.6 Ry Breite um die Fermienergie ein solcher von $8.4 \cdot 10^{-3}$ Ry erzielt.

In Tab.1 ist der Satz ausreduzierter Parameter $\tilde{\epsilon}$ (siehe (2.24)) angegeben. In der ersten Spalte ist die Bezeichnung der Blöcke (2.8) angegeben. Innerhalb eines Blockes sind die gruppentheoretisch unabhängigen Parameter in der Reihenfolge ihres erstmaligen Auftretens beim zeilenweisen Durchlaufen aufgeführt (Spalten 2-5). Es ist $\tilde{\epsilon}$ bzw. $\text{Im } \tilde{\epsilon}$ angegeben, je nachdem ob $\tilde{\epsilon}$ reell oder rein imaginär ist (2.13).

Block	Repräsentanten $\langle \vec{R} \rangle$ der Schalen $[a/2]$			
	(0,0,0)	(1,1,0)	(2,0,0)	(1,1,2)
Γ_1, Γ_1	0.94915	-0.08997	-0.00250	0.00411
Γ_1, Γ_{15}		0.12833	-0.00459	-0.00001 -0.00138
Γ_1, Γ_{12}		0.02304	0.00842	-0.00173
Γ_1, Γ'_{25}		0.02220		-0.00107 -0.00044
Γ_{15}, Γ_{15}	1.69360	0.27232 0.02932 -0.02817	-0.00635 -0.00813	-0.00241 -0.00045 -0.01360 -0.00486
Γ_{15}, Γ_{12}		0.01127 0.02328	0.00029	-0.00128 -0.00040 0.00463
$\Gamma_{15}, \Gamma'_{25}$		0.00335 0.03349	-0.00083	0.00083 0.00043 -0.00227 -0.00341 0.00358
Γ_{12}, Γ_{12}	0.46295	-0.01280 0.02201	-0.00756 0.00042	0.00051 -0.00077
$\Gamma_{12}, \Gamma'_{25}$		0.01435		-0.00056 0.00027 -0.00027
$\Gamma'_{25}, \Gamma'_{25}$	0.43457	-0.02770 -0.00690 0.02770	0.00004 0.00493	-0.00177 -0.00125 -0.00040 -0.00187

Tab. 1 Ausreduzierte Parameter $\tilde{\epsilon}$

5.3 DIE FERROMAGNETISCHE BANDSTRUKTUR

Durch Diagonalisierung von H^{σ} (siehe (3.12)) bestimmten wir die ferromagnetische Bandstruktur selbstkonsistent. Dazu wurde von einem Startsatz

$$\langle n_{\mu\sigma} \rangle^{\text{ferro}} - \langle n_{\mu} \rangle^{\text{para}} ; \mu = 5, \dots, 9 ; \sigma = \uparrow, \downarrow$$

ausgegangen und bis zur Selbstkonsistenz iteriert. In jedem Iterationsschritt wurden die Fermienergie und die Besetzungszahlen $\langle n_{\mu\sigma} \rangle$ (siehe (3.11)) neu berechnet. Die auftretenden k -Summen liefen über 916 Punkte im 48tel der BZ.

Der Parameter $U_{\text{eff}}^{\text{d-d}}$ wurde so bestimmt, daß er zu einer effektiven Magnetonenzahl von ungefähr 0.56 [53,54,21,50] führte:

$$(5.2) \quad \sum_{\mu} [\langle n_{\mu\uparrow} \rangle^{\text{ferro}} - \langle n_{\mu\downarrow} \rangle^{\text{ferro}}] \stackrel{!}{=} 0.56.$$

Die Ergebnisse für die effektive Magnetonenzahl in Abhängigkeit von der Wahl des Parameters $U_{\text{eff}}^{\text{d-d}}$ zeigt Tab.2. Es wurde dabei in jedem Fall von einem Startsatz mit der Magnetonenzahl 0.56 ausgegangen.

$U_{\text{eff}}^{\text{d-d}}$	0.22	0.25	0.28	0.30	0.32
Anzahl der Iterationen	10	4	3	5	10
effektive Magnet.zahl (5.2)	fall.	0.54	0.56	0.58	steig.

Tab.2 Zur Bestimmung des Parameters $U_{\text{eff}}^{\text{d-d}}$

Der Satz von Größen, der zusammen mit den Parametern $\tilde{\epsilon}$ (Tab.1) die ferromagnetische Bandstruktur festlegt, ist in Tab.3 angegeben - mit den Abkürzungen:

$$(5.3) \quad d_{\mu\sigma} = \langle n_{\mu\sigma} \rangle^{\text{ferro}} - \langle n_{\mu} \rangle^{\text{para}} ; \quad \mu = 5, \dots, 9 \\ \sigma = \uparrow, \downarrow$$

Aus Symmetriegründen gilt:

$$(5.4) \quad d_{5\sigma} = d_{6\sigma} ; \quad d_{7\sigma} = d_{8\sigma} = d_{9\sigma} ; \quad \sigma = \uparrow, \downarrow$$

Tabelle 4 enthält die Besetzungszahlen $\langle n_{\mu\sigma} \rangle$ der verallgemeinerten Wannierzustände μ . Die 10 zu besetzenden Zustände (pro $\vec{R}$) verteilen sich also im Verhältnis 9.07 zu 0.93 auf d- und sp-artige Wannierzustände.

$U_{\text{eff}}^{\text{d-d}}$	0.28 Ry
$J_{\text{eff}}^{\text{sp-d}}$	0.004 Ry
$d_{5\uparrow}$	0.0302
$d_{5\downarrow}$	-0.0256
$d_{7\uparrow}$	0.0719
$d_{7\downarrow}$	-0.0784

Tab.3

Kenngößen der ferromagnetischen Bandstruktur;
zur Definition von $d_{\mu\sigma}$ siehe (5.3)

$\langle n_{1\uparrow} \rangle$	0.2929	$\langle n_{5\uparrow} \rangle$	0.9663
$\langle n_{1\downarrow} \rangle$	0.2923	$\langle n_{5\downarrow} \rangle$	0.9105
$\langle n_{2\uparrow} \rangle$	0.0559	$\langle n_{7\uparrow} \rangle$	0.9608
$\langle n_{2\downarrow} \rangle$	0.0598	$\langle n_{7\downarrow} \rangle$	0.8105

Tab.4 Besetzungszahlen der Wannierzustände

Abb.3 zeigt die berechnete ferromagnetische Bandstruktur ohne die energetisch hochliegenden, unbesetzten Bänder. Man beachte die unterschiedliche Aufspaltung der beiden d-artigen Zustände Γ_{12} und Γ_{25}' . Die Aufspaltung eines Zustandes $n, \vec{k}$ hängt über $U_{\mu n}(\vec{k}, \sigma)$ von dem "μ-Charakter" des Zustandes ab.

Einige charakteristische Energiedifferenzen und Spinaufspaltungen in Symmetriepunkten sind in den Tabellen 5 und 6 angegeben. Zum Vergleich sind die entsprechenden Werte aus den Arbeiten von Callaway und Wang [19] und von Connolly (2/3 Slateraustausch) [17] aufgeführt, soweit dort angegeben.

Für die Spinaufspaltung an der Fermienergie gibt Wohlfarth [51] $(0.35 \pm 0.05) \text{ eV}$ an. Diesen Wert fand er durch Analyse von theoretischem und experimentellem Zahlenmaterial.

Der von uns gefundene Wert 0.029 Ry (0.395 eV) liegt noch im abgeschätzten Energieintervall.

Die Zustandsdichten für beide Spinrichtungen wurden nach Gilat und Raubenheimer [52] unter Verwendung von 2304 Punkten im 48tel der BZ berechnet. Den dazu benötigten Energiegradienten gewinnt man auf folgende Weise [25] aus der Hamiltonmatrix (3.10)

$$(5.5) \quad \vec{\nabla}_{\vec{k}} E_m(\vec{k}, \epsilon) = \sum_{\nu\mu} U_{\nu m}^*(\vec{k}, \epsilon) \vec{\nabla}_{\vec{k}} H_{\nu\mu}^{\text{para}}(\vec{k}) U_{\mu m}(\vec{k}, \epsilon).$$

Die Zustandsdichten in Abb.4 und Abb.5 werden von einer ausgeprägten Spitze in der Nähe der Fermienergie beherrscht.

Die bei Callaway und Wang [19] vorhandene, 0.15 Ry tiefer liegende, zweite Spitze ist bei uns nicht vorhanden.

Für die Spitze in der Nähe der Fermikante ist das flache Z_2 - Q_+ -Band (s.Abb.3) verantwortlich, das für Spin $\uparrow$ unterhalb und für Spin $\downarrow$ oberhalb der Fermienergie verläuft.

Die Zustandsdichte an der Fermienergie beträgt

$$26.4 \text{ Elektr./Atom} \cdot \text{Ry},$$

Callaway und Wang [19] erhielten 23.5 Elektr./Atom·Ry.

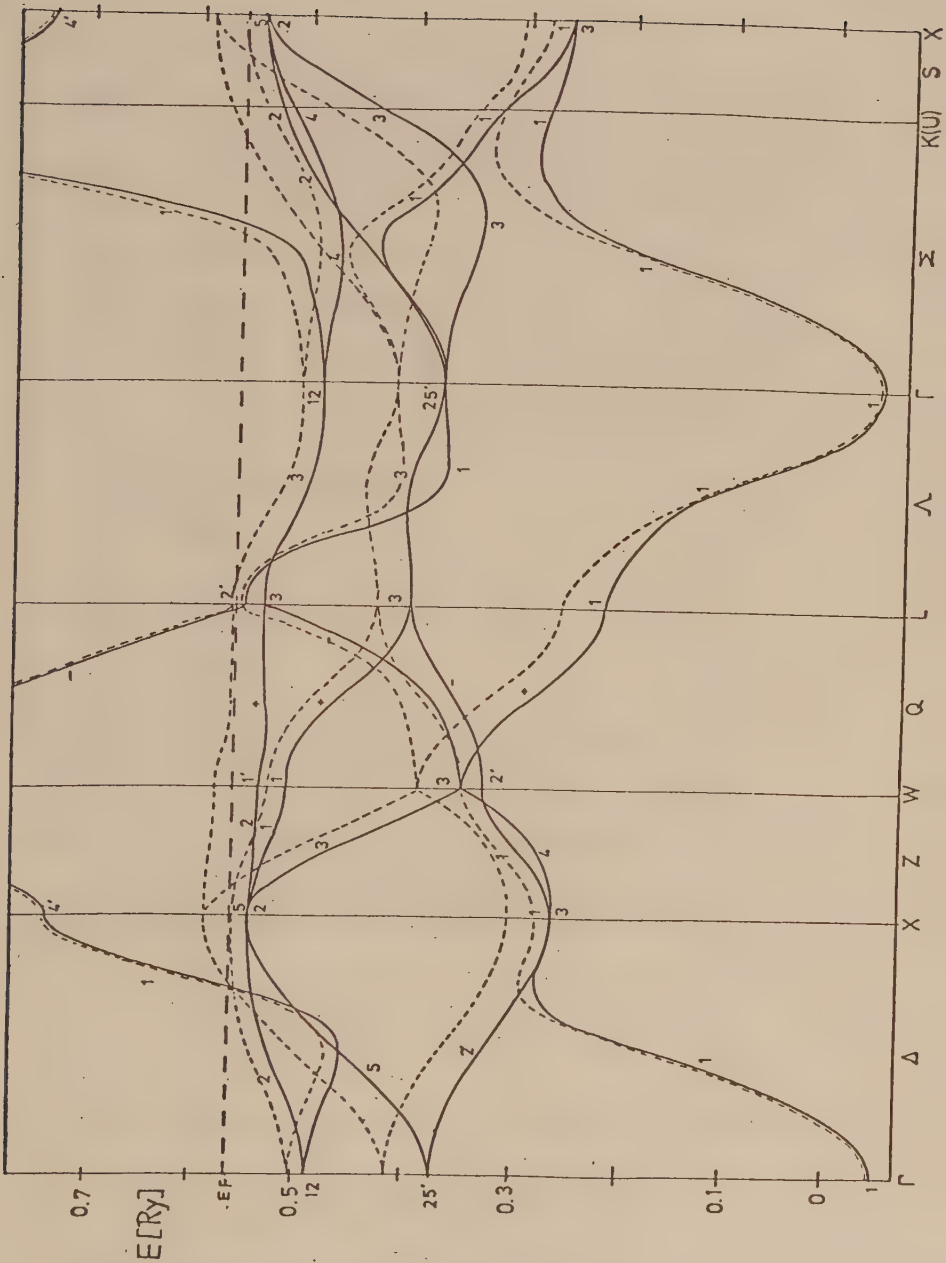


Abb.3 Ferromagnetische Bandstruktur von Nickel
 (—) $\text{Spin}\uparrow$, (----) $\text{Spin}\downarrow$

	Spin ↑			Spin ↓		
	Vorlieg. Arbeit	Callaway, Wang [19]	Connolly [17]	Vorlieg. Arbeit	Callaway, Wang [19]	Connolly [17]
$\Gamma_{25}' - \Gamma_1$	0.421	0.483	0.478	0.460	0.534	0.542
$\Gamma_{12} - \Gamma_{25}'$	0.114	0.091		0.088	0.095	
$X_5 - X_1$	0.283	0.300	0.330	0.310	0.323	0.362
$X_5 - X_2$	0.001	0.009		0.027	0.010	
$X_4' - X_5$	0.194	0.177		0.154	0.118	
$X_5 - \Gamma_1$	0.594	0.639	0.625	0.634	0.698	0.698
$X_4' - \Gamma_1$	0.789	0.816	0.841	0.789	0.816	0.842
$E_F - X_5$	0.015			-0.026		
$E_F - X_2$	0.016			≈ 0		
$E_F - L_2^{(2)}$	0.024			-0.004		
$E_F - L_2'$	0.007			0.004		
d-Breite $X_{5\downarrow} - X_{1\uparrow}$	0.325	0.360				

Tab.5 Ausgewählte Energiedifferenzen [Ry]

Zustand	$E_{\downarrow} - E_{\uparrow}$		
	vorlieg. Arbeit	Callaway, Wang [19]	Connolly [17]
Γ_1	0.002	0.001	-0.004
Γ_{25}'	0.042	0.052	0.060
Γ_{12}	0.016	0.057	
X_1	0.015	0.038	
X_3	0.042	0.044	
X_2	0.016	0.060	
X_5	0.042	0.060	
X_4'	0.002	0.001	
L_1	0.040	0.030	
$L_3^{(1)}$	0.029	0.052	
$L_3^{(2)}$	0.029	0.060	
L_2'	0.002	0.000	
ΔE_F	0.029	0.058^{(x)}	0.075

Tab. 6 Spinaufspaltungen in Symmetriepunkten;
 ΔE_F bezeichnet die Spinaufspaltung an der
Fermienergie; (x) nach Wang, Callaway [8]

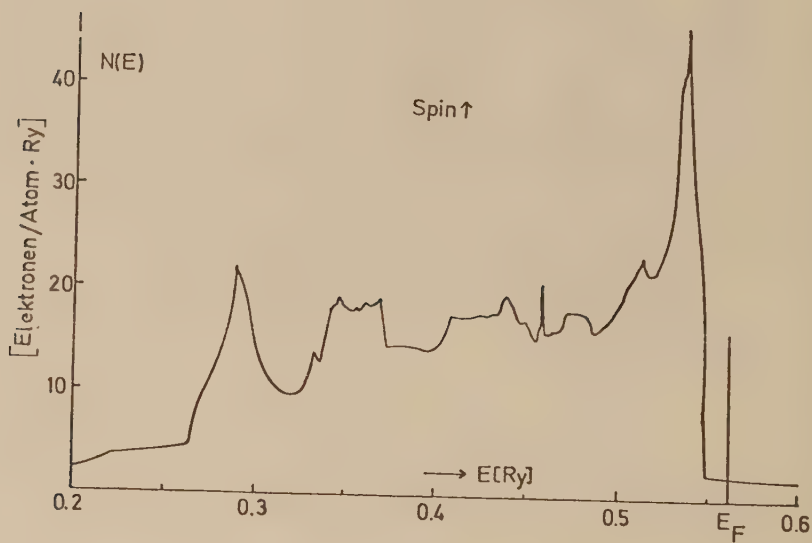
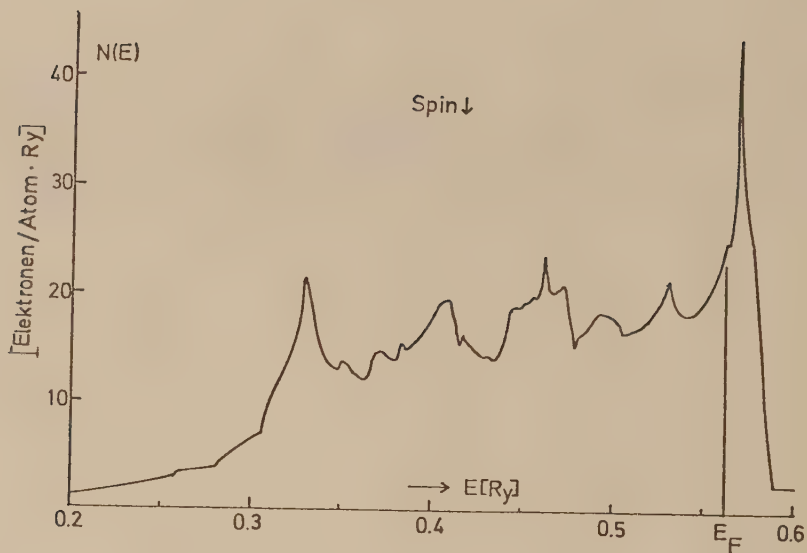


Abb.4 und 5 Zustandsdichten

5.4 VERGLEICH MIT EXPERIMENTELLEN ERGEBNISSEN

Trotz der Einwände [14] gegen eine bandtheoretische Interpretation der manigfaltigen experimentellen Ergebnisse an ferromagnetischem Nickel soll eine Zuordnung von bandtheoretischen Größen zu Strukturen in experimentellen Ergebnissen versucht werden.

Dies ist umso angebrachter, da zwei neuere Ergebnisse [72,75] von Messungen mit sehr unterschiedlichen Methoden sich durch unsere Bandstruktur erklären lassen.

Messungen der Sättigungsmagnetisierung [53,54] wurden von uns dazu verwendet, um den Parameter $U_{\text{eff}}^{\text{d-d}}$ (Kap.5.3) zu bestimmen.

Zornberg [22] zog Messungen der Fermioberfläche mit dem de Haas-van Alphen-Effekt [55] und optische Messungen [56,57] heran, um Details seiner Bandstruktur festzulegen.

Die Anordnung der Bänder in den Punkten X und L (s.Abb.3) und ihr Abstand von der Fermienergie spielen dabei eine besondere Rolle. Die von Zornberg gefundene Anordnung im L-Punkt ist zusammen mit der unsrigen in Abb.6 dargestellt.

Ein Vergleich der Energiedifferenzen ist in Tab.7 durchgeführt. Die dort in Spalte 2 angegebenen Werte entsprechen zwei möglichen Bandstrukturen, die nach Zornberg mit den Messungen in Einklang stehen.

Der wesentliche Unterschied besteht darin, daß unser L_2' -Niveau zu hoch liegt.

Die Spinaufspaltung ist aus Photoemissionsmessungen [58,59] und aus optischen Messungen [60,61] zu erhalten.

Zornberg [22]

vorliegende Arbeit

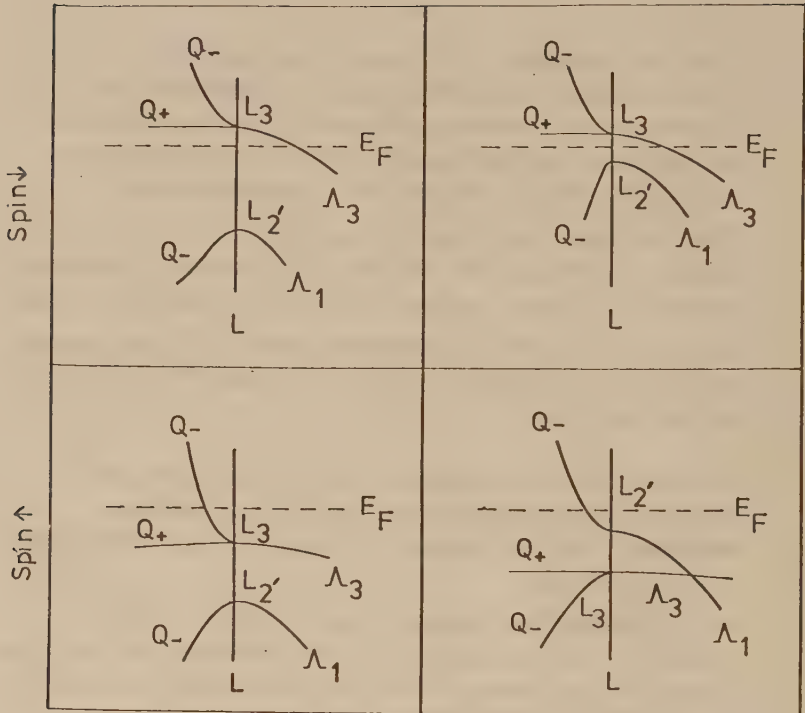


Abb.6 Schematische Darstellung der Anordnung der Energien am L-Punkt

In zwei Arbeiten [51,62] wurde durch genaue Analyse verschiedener experimenteller Ergebnisse ein "wahrscheinlichster Wert" für die Spinaufspaltung gefunden.

Angaben über die Breite der besetzten d-Bänder sind aus Ultraviolett-Photoemissionsmessungen (UPS) [63,64] zu erhalten. In den Arbeiten von Hagstrum und Becker [65] bzw. Hagstrum [66] wurden mit Hilfe der Ionenneutralisationsspektroskopie Ergebnisse älterer Arbeiten [67] korrigiert.

	Zornberg [22]	vorlieg. Arbeit	herangezogene Messung (Autor)
$E_F - L_{2'}^{\uparrow}$	0.040 0.038	0.007	Tsui [55]
$L_{3\downarrow}^{(2)} - E_F$	0.011 0.0145	0.004	Tsui [55]
$L_{3\downarrow}^{(2)} - L_{2'}^{\downarrow}$	0.051 0.052	0.008	Ehrenreich, Philipp Olechna [56]
$E_F - L_{3\uparrow}^{(2)}$	0.020 0.030	0.024	Hanus, Feinleib Scouler [57]
$X_{5\downarrow} - E_F$	0.0194 0.0257	0.026	Tsui [55]
$E_F - X_{2\downarrow}$	≈ 0	≈ 0	Tsui [55]
$K_{2\downarrow} - E_F$	0.004 0.002	0.010	
Spin- Aufsp.	0.031 0.044	0.029	

Tab.7 Vergleich von Energiedifferenzen [Ry]

Erskine und Stern [68] konnten mit Hilfe des magneto-optischen Kerr-Effektes [69,70] die d-Band-Breite und die Spinaufspaltung bestimmen.

Soweit möglich ist eine Zusammenstellung der Werte aus den angeführten Messungen in Tab.8 erfolgt. Zusätzlich sind dort die entsprechenden Werte aus Bandstrukturechnungen angeführt. Connolly [17] und Callaway, Wang [19,8] finden eine zu große Spinaufspaltung. Diese Autoren erhalten auch zu große d-Band-Breiten, wenn man die neuere Messung von Eastman [64] beachtet.

Autor	Spinaufspaltung	d-Band-Breite
Rowe, Tracy [58]	0.020 ± 0.002	
Stoll [60,61]	0.026 0.040	
Wohlfarth [51]	0.026 ± 0.004	
Phillips [62]	0.037 ± 0.007	
Eastman [63]	0.029	0.404
Eastman [64]		0.294
Erskine, Stern [68]	0.037	0.331
		$X_{5\downarrow} - X_{1\uparrow}$
Callaway, Wang [19]		0.360
Wang, Callaway [8]	0.058	
Connolly [17] (2/3 Slater-Aust.)	0.075	~ 0.4
vorliegende Arbeit	0.029	0.325

Tab. 8 Vergleich der Spinaufspaltungen (an der Fermienergie) und der d-Band-Breiten - experimentell und theoretisch

Ein Fortschritt in der Ultraviolett-Photoemissions-spektroskopie konnte in neuerer Zeit durch die Messung der gerichteten Photoemission an Einkristalloberflächen erzielt werden [71].

Heimann und Neddermeyer [72] konnten die Spektren der senkrecht zu den (100)- und (111)-Oberflächen emittierten Photoelektronen teilweise mit direkten Übergängen auf der Δ - bzw. A -Richtung unserer Bandstruktur erklären. Die Autoren finden die von uns angegebene Spinaufspaltung in guter Übereinstimmung mit ihren experimentellen Befunden.

Rau und Sizmann [73] benutzten den Elektroneneinfang durch streifend einfallende Deuteronen dazu, um die Elektronenspinpolarisation zu bestimmen. Es wird als Arbeitshypothese angenommen [74], daß nur Elektronen mit Fermienergie und $\vec{k}$ -Vektor senkrecht zur Oberfläche (hkl) eingefangen werden.

hkl	theor.	exp.
110	-81	-96.1
100	-85	-64.5
111	-75	-43.6
120	+17	+15.5

Tab.9 Elektronenspinpolarisation

Es ergibt sich vollkommene Übereinstimmung (Tab.9) bzgl. der Vorzeichen [75].

5.5 ZUR NÄHERUNG FÜR DIE $e^{i\vec{q}\vec{r}}$ -MATRIXELEMENTE

Wir haben die Näherungen (4.20) und (4.21) mit den zur Verfügung stehenden MAPW-Wellenfunktionen [20] geprüft, d.h. wir haben

$$(5.6) \quad F_{\mu\nu}(\vec{k}, \vec{q}) = \sum_{m,n} U_{\mu m}(\vec{k} + \vec{q}) (m\vec{k} + \vec{q} | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | n\vec{k}) U_{\nu n}^*(\vec{k})$$

(im paramagnetischen Fall) berechnet.

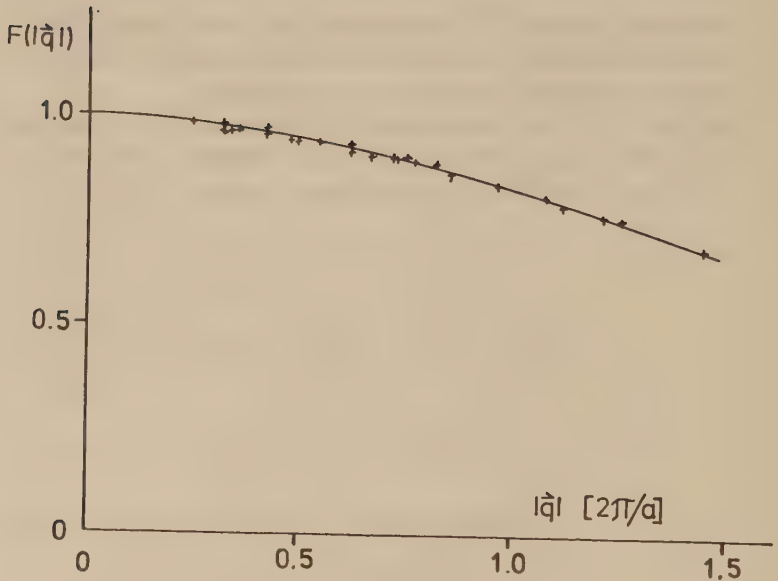


Abb. 7 Die Funktion F

Dabei konnten wir die Annahmen

$$(a) \quad F_{\mu\nu}(\vec{k}, \vec{q}) \text{ unabhängig von } \vec{k}$$

und

$$(b) \quad F_{\mu\nu}(\vec{q}) = F(\vec{q}) \delta_{\mu\nu}$$

nur für μ und ν d-artig bestätigen. Darüber hinaus gilt in guter Näherung

$$(5.7) \quad F(\vec{q}) = F(|\vec{q}|) .$$

Den Verlauf von $F(|\vec{q}|)$ zeigt Abb.7.

5.6 BERECHNUNG DER MATRIX Γ

Um $\chi^{-+}(\vec{q}, \omega)$ zu bekommen, brauchen wir nach (4.24), (4.22) die Matrix $\Gamma(\vec{q}, \omega + i\varepsilon)$.

Jedes Matricelement $\Gamma_{\mu\nu}(\vec{q}, z)$ ist eine analytische Funktion von z in der oberen komplexen Halbebene, deren Real- und Imaginärteil durch eine Kramers-Kronig-Relation miteinander verknüpft sind [45]. Für den Imaginärteil gilt nach (4.23)

$$(5.8) \quad \text{Im } \Gamma_{\mu\nu}(\vec{q}, \omega + i\varepsilon) = -\frac{\pi}{N} \sum_{\substack{\mu, \nu \\ \vec{k}}} W_{\mu\nu}^{\mu\nu}(\vec{k}, \vec{q}) (f_{\mu\vec{k}+\vec{q}\uparrow} - f_{\mu\vec{k}\downarrow}) \cdot \delta(\hbar\omega - E_{\mu}(\vec{k}\downarrow) + E_{\mu}(\vec{k}+\vec{q}\uparrow))$$

mit

$$(5.9) \quad W_{\mu\nu}^{\mu\nu}(\vec{k}, \vec{q}) = U_{\mu\mu}^*(\vec{k}\downarrow) U_{\mu\mu}(\vec{k}+\vec{q}\uparrow) U_{\nu\nu}^*(\vec{k}+\vec{q}\uparrow) U_{\nu\nu}(\vec{k}\downarrow).$$

Wegen der δ -Funktion ist die Berechnung des Imaginärteils viel weniger rechenaufwendig, als die Bestimmung von $\Gamma_{\mu\nu}$ direkt.

Die Summation läuft zunächst über die ganze BZ. Man kann diese Summation auf ein 48tel der BZ und die Sternoperationen von $\vec{q}$ (siehe (2.14)) reduzieren. Wegen der Rechenintensivität dieses Programnteils wurde $\vec{q}$ auf der Δ -Richtung gewählt.

Zunächst berechneten wir $\text{Im } \Gamma_{\mu\nu}$ für $\mu \leq \nu$ (Γ ist hermitesch) zwischen -1.0 und +1.0 Ry mit einem

Abstand von $2 \cdot 10^{-3}$ Ry unter Heranziehung von 916 Punkten (im 48tel der BZ).

Danach wurden die Diagonalelemente im Intervall 0.0 Ry bis 0.05 Ry in einem feineren ω -Netz (Stützstellenabstand: $2 \cdot 10^{-4}$ Ry) mit 2304 Punkten berechnet, da diese Matrixelemente am größten sind und eine starke Variation in diesem Energiebereich zeigen. Dafür verantwortlich ist das schon in Kap.5.3 erwähnte flache Z_2 - Q_+ -Band, das für $\text{Spin}\uparrow$ unterhalb und für $\text{Spin}\downarrow$ oberhalb der Fermienergie verläuft.

Die benötigte Rechnerkernzeit für einen $\vec{q}$ -Punkt betrug ungefähr 6300 sec^(x). Der Realteil von $\Gamma_{\mu\nu}(\vec{q}, \omega + i\varepsilon)$ wurde nach Kramers-Kronig anschließend durch numerische Integration bestimmt.

(x) Die Rechenprogramme wurden in der Sprache Algol 60 geschrieben und auf dem Großrechner TR440 von AEG/Telefunken am Leibnizrechenzentrum der Bayerischen Akademie der Wissenschaften gerechnet.

5.7 ERGEBNISSE FÜR χ^{-+} DISPERSION DER SPINWELLEN VERGLEICH MIT EXPERIMENTELLEN DATEN

Die Berechnung von $\chi^{-+}(\vec{q}, \omega)$ erfordert nach (4.22) und (4.24) nur noch einfache Operationen mit komplexen Matrizen. χ^{-+} wurde (auf der Δ -Richtung) für folgende $|\vec{q}|$ -Werte berechnet (in Einheiten von $\frac{2\pi}{a}$)

0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5 ,

$\vec{q}=0$ diente zu Testzwecken durch Prüfung der Gültigkeit von (4.26).

Die Abb.8 zeigt den Verlauf des Imaginarteils von χ^{-+} als Funktion von ω für $|\vec{q}| = 0.4$. Aus der Lage des ausgeprägten Maximums entnimmt man die Energien der Spinwellen (Magnonen) E_{SW} . Auch für die anderen $\vec{q}$ -Werte wurde ein ähnlicher Verlauf gefunden.

In allen Fällen ist $\text{Im } \Gamma_{\mu\nu}(\vec{q}, E_{SW})$ klein, so daß die Spinwellen nur wenig durch Stoner-Anregungen gedämpft sind [41].

In Abb.9 ist neben den in obigen $\vec{q}$ -Punkten gewonnenen Magnonenenergien die experimentelle Dispersionskurve für die Temperatur $T = 4.2\text{K}$ eingezeichnet [76].

Bei der Bewertung der Diskrepanz zwischen gemessener Kurve und unseren berechneten Energien muß beachtet werden, daß schon eine Vergrößerung der Werte von $\Gamma_{\mu\nu}$ um ungefähr 5% die experimentellen Magnonenenergien ergibt.

Für $|\vec{q}| \neq 0$ konvergiert die bei der Berechnung von $\text{Im } \Gamma_{\mu\nu}$ auftretende $\vec{k}$ -Summe (5.8) relativ schlecht. Eine wesentliche Erhöhung der Anzahl der $\vec{k}$ -Punkte

über die Zahl von 2304 hinaus ist aus Gründen der Rechenzeit noch nicht möglich.

Berücksichtigt man darüber hinaus die fraglichen Energiedifferenzen von einigen 10^{-3} Ry, so sieht man, daß minimale Änderungen in der Bandstruktur, etwa über die Spinaufspaltung des Z_2-Q_+ -Bandes, entscheidenden Einfluß auf die Magnonenergien haben.

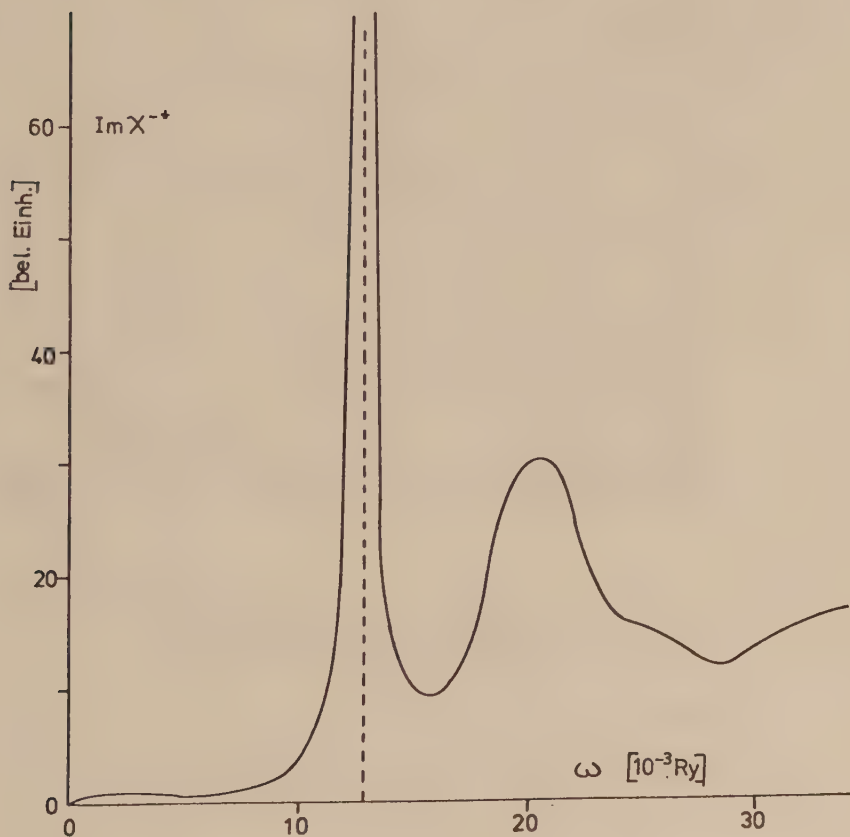


Abb.8 $\text{Im } \chi^{-+}(\vec{q}, \omega)$ für $\vec{q} = \frac{2\pi}{a}(0.4, 0, 0)$

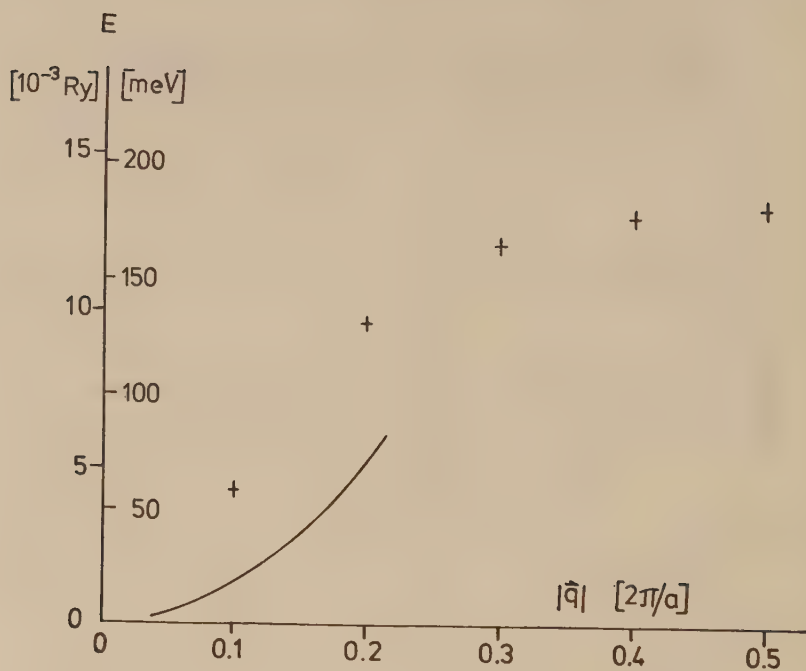


Abb.9 Dispersionskurve der Spinwellen für die Δ -Richtung, (—): experimentell

ANHANG 1 DAS WIGNER-THEOREM

Wir geben hier nur den Satz an, zur Herleitung siehe etwa [77].

Es sei D eine i.a. reduzible, unitäre Darstellung einer (endlichen) Gruppe G und es gelte

$$(A1) \quad D(g) \cdot H = H \cdot D(g) \quad \forall g \in G,$$

d.h.

$$H = [D(g) \otimes D(g)^*] \cdot H.$$

D werde ausreduziert, d.h. mit einer unitären Matrix V auf Blockdiagonalgestalt gebracht:

$$(A2) \quad \tilde{D}(g) = V \cdot D(g) V^+ = \bigoplus_i [E_{r_i} \times \Delta^{(i)}(g)] ; \quad \forall g \in G.$$

Dabei sei r_i die Häufigkeit der irreduziblen Darstellung $\Delta^{(i)}$ von G , E_{r_i} die r_i -reihige Einheitsmatrix. Das Produkt $A \times B$ ist dabei genauso definiert wie das Kroneckerprodukt (s. Gl. (2.7)), nur mit der Maßgabe, daß die Paare (ν, μ) bzw. (ϱ, ϱ') in lexikographischer Anordnung als Zeilen- bzw. Spaltenindizes anzusehen sind.

Es gilt dann:

Satz (Wigner-Theorem)

$$(A3) \quad \tilde{H} = V \cdot H \cdot V^+ = \bigoplus_i [H^{(i)} \times E_{\ell_i}]$$

Dabei ist: $H^{(i)}$ eine r_i -reihige (quadratische) Matrix
 ℓ_i die Dimension der irreduziblen Darstellung $\Delta^{(i)}$
 E_{ℓ_i} die ℓ_i -reihige Einheitsmatrix.

Die Matrizen $H^{(i)}$ enthalten die gruppentheoretisch unabhängigen Elemente von H . Die Erweiterung auf den Fall

$$(A4) \quad D^{(1)}(g) \cdot H = H \cdot D^{(2)}(g)$$

ist unmittelbar ersichtlich.

LITERATURVERZEICHNIS

- 1 W. Heisenberg, Z.f.Phys. 49, 619 (1928)
- 2 S.W. Vonsovskii, A. Izyumov, Soviet Physics Uspekhi 5, 547 (1963)
- 3 N.F. Mott, Adv.in Phys. 13, 325 (1964)
- 4 J.C. Slater, Phys.Rev. 49, 537 (1936)
- 5 E.C. Stoner, Proc.Roy.Soc. A154, 656 (1936)
- 6 E.C. Stoner, Proc.Roy.Soc. A165, 372 (1938); ibid. A169, 339 (1939)
- 7 E.P. Wohlfarth, Proc.Roy.Soc. A195, 434 (1949); Phil.Mag. 42, 374 (1951)
- 8 C.S. Wang, J. Callaway, Phys.Rev. B9/11, 4897 (1974)
- 9 J.C. Slater, Phys.Rev. 49, 931 (1936)
- 10 J. Hubbard, Proc.Roy.Soc.(London), A276, 238 (1963); ibid. A277, 237 (1964); ibid. A281, 401 (1964)
- 11 J. Hubbard, Proc.phys.Soc. 84, 455 (1964)
- 12 C. Herring, in "Magnetism" (G. Rado, H. Suhl, Ed.), Vol.IV, AP, New York (1966)
- 13 C. Busch, M. Campagna, H.C. Siegmann, Phys.Rev. B4, 746 (1971)
- 14 H.C. Siegmann, Phys.Rep. 17C, No2 (1975)
- 15 E.P. Wohlfarth, Phys.Lett. 36A/2, 131 (1971)
- 16 M.C. Gutzwiller, AIP Conf.Proc. No 10, 1197 (1972)
- 17 J.W.D. Connolly, Phys.Rev. 159, 415 (1967)
- 18 J. Langlinais, J. Callaway, Phys.Rev. B5/1, 124 (1972)
- 19 J. Callaway, C.S. Wang, Phys.Rev. B7/3, 1096 (1973)
- 20 G. Meister, Dissertation, München 1972
- 21 L. Hodges, H. Ehrenreich, N.D. Lang, Phys.Rev. 152, 505 (1966)

- 22 E.I. Zornberg, Phys.Rev. B1, 244 (1970)
- 23 J. Callaway, H.M. Zhang, Phys.Rev. B1, 305 (1970)
- 24 F.M. Mueller, Phys.Rev. 153, 659 (1967)
- 25 H. Bross, Z.f.Phys. 243, 311 (1971)
- 26 G.J. Bradley, A.P. Cracknell, The Mathematical Theory of Symmetry in Solids, Oxford (1972)
- 27 L.P. Bouckaert, R. Smoluchowski, E.P. Wigner, Phys.Rev. 50, 58 (1936)
- 28 H.-W. Streitwolf, Gruppentheorie in der Festkörperphysik, Leipzig (1967)
- 29 G.F. Koster, Phys.Rev. 109, 227 (1958)
- 30 H. Ehrenreich, L. Hodges, in: Methods in Comp.Phys. (B. Alder, S. Fernbach, M. Rotenberg, Eds.) Vol.8, New York (1968)
- 31 M.C. Gutzwiller, Phys.Rev.Lett. 10, 159 (1963)
- 32 J. Kanamori, Progr.Theor.Phys.(Kyoto) 30, 275 (1963)
- 33 C. Kittel, Quantum Theory of Solids, New York (1963)
- 34 B.H. Brandow, AIP Conf.Proc. No 18/1, 702 (1973)
- 35 J.B. Sokoloff, J.Phys.F 5, 528 (1975)
- 36 J.C. Slater, J.Appl.Phys. 39, 761 (1968)
- 37 W.N. Furey, Doctoral thesis, Cambridge(Mass.) (1967)
- 38 E. Abate, M. Asdente, Phys.Rev. 140, A1303 (1965)
- 39 L.M. Falicov, J. Ruvalds, Phys.Rev. 172, 498 (1968)
- 40 L. M. Falicov, J. Ruvalds, Phys.Rev. 172, 508 (1968)
- 41 T. Izuyama, D. Kim, R. Kubo, J.Phys.Soc.Jap. 18, 1025 (1963)
- 42 R.D. Lowde, C.G. Windsor, Adv.in Phys. 19, 813 (1970)
- 43 J.F. Cooke, Phys.Rev. B7, 1108 (1973)

- 44 A.K. Rajagopal, H.Brooks, Suppl.Nuovo Cim. 3, 807 (1967)
- 45 R.M. White, Quantum Theory of Magnetism, New York (1970)
- 46 D.N. Zubarev, Soviet Phys.Usp. 3, 320 (1960)
- 47 J.F. Cooke, H.L. Davis, AIP Conf.Proc. No 10, 1218 (1972)
- 48 H. Bross, Phys.Kond.Mat. 3, 119 (1964)
- 49 H. Bross, G. Bohn, G. Meister, W. Schubö, H. Stöhr, Phys.Rev. B2, 3098 (1970)
- 50 F.J. Arlinghaus, R.A. Reck, Phys.Rev. B11, 3488 (1975)
- 51 E.P. Wohlfarth, Proc.of Intern.Conf.on Magn., Nottingham (1964), S.51
- 52 G. Gilat, L.J. Raubenheimer, Phys.Rev. 144, 390 (1966)
- 53 H. Danan, A. Herr, A.J.P. Meyer, J.Appl.Phys. 39, 669 (1968)
- 54 G. Fischer, A. Herr, A.J.P. Meyer, J.Appl.Phys. 39, 545 (1968)
- 55 D.C. Tsui, Phys.Rev. 164, 669 (1967)
- 56 H. Ehrenreich, H.R. Philipp, D.J. Olechna, Phys.Rev. 131, 2469 (1963)
- 57 J. Hanus, J. Feinleib, W.J. Scouler, Phys.Rev.Lett. 19, 16 (1967); J.Appl.Phys. 39, 1272 (1968)
- 58 J.E. Rowe, J.C. Tracy, Phys.Rev.Lett. 27, 799 (1971)
- 59 D.T. Pierce, W.E. Spicer, Phys.Rev. B6, 1787 (1972)
- 60 M.-Ph. Stoll, J.Appl.Phys. 42, 1717 (1971)
- 61 M.-Ph. Stoll, Solid State Comm. 8, 1207 (1970)
- 62 J.C. Phillips, J.Appl.Phys. 39, 755 (1968)
- 63 D.E. Eastman, J.Appl.Phys. 40, 1387 (1969)
- 64 D.E. Eastman, Phys.Rev. B3, 1769 (1971)
- 65 H.D. Hagstrum, G.E. Becker, Phys.Rev. 159, 572 (1967)
- 66 H.D. Hagstrum, J.Appl.Phys. 40, 1398 (1969)

- 67 A.J. Blodgett, W.E. Spicer, Phys.Rev. 146, 390 (1966)
- 68 J.L. Erskine, E.A. Stern, Phys.Rev.Lett. 30, 1329 (1973)
- 69 G.S. Krinchik, R.D. Nuralieva, Soviet Phys.-JETP 9, 724 (1959)
- 70 G.S. Krinchik, V.A.Artemjev, J.Appl.Phys.39, 1276 (1968)
- 71 B. Feuerbacher, B. Fitton, Phys.Rev.Lett. 30, 923 (1973)
- 72 P. Heimann, H. Neddermeyer, wird veröffentlicht
- 73 C. Rau, R. Sizmann, Phys.Lett. 43A, 317 (1973)
- 74 C. Rau, R. Sizmann, Proc.5th Int.Conf.on Atomic Coll. in Solids, Gattlinburgh, Tenn. (1973); Ed.:S. Datz
- 75 C. Rau, R. Sizmann, unveröffentlicht
- 76 H.A. Mook, J.W. Lynn, R.M. Nicklow, Phys.Rev.Lett. 30, 556 (1973)
- 77 M.I. Petraschen, E.D. Trifonow, Anwendungen der Gruppentheorie in der Quantenmechanik, Berlin (1969)

Herrn Professor Dr. H. Bross gilt mein besonderer Dank für die Anregung zu dieser Arbeit und für viele hilfreiche Diskussionen.

Außerdem danke ich

- Herrn Dr. H. Stöhr für die Beratung in numerischen Fragen
- Herrn Dipl.-Phys. A. Faust,
Herrn Dr. E. Trautenberg und
Herrn Dr. K. H. Weilacher für die Überlassung von Programmen und Programmteilen
- Herrn Dr. G. Meister dafür, daß er die Ergebnisse seiner Dissertation zur Verfügung stellte
- dem Leibniz-Rechenzentrum

Lebenslauf

Erwin Marschall

geb. am 31. Oktober 1944 in Hünfeld/Hessen

Eltern: Metzgermeister Bernhard Marschall, gest. 1947
in russischer Kriegsgefangenschaft
und Maria, geb. Malkmus

Seit 1970 verheiratet mit Heike, geb. Trumpf

1951 - 1955	Volksschulbesuch in Hünfeld
1955 - 1964	Besuch des Wigbertgymnasiums in Hünfeld
Febr. 1964	Reifeprüfung
1964 - 1970	Physikstudium an der Universität Göttingen, Diplomarbeit bei Prof. Dr. M. Kohler
Febr. 1970	Diplomhauptprüfung
Seit März 1970	bei Prof. Dr. H. Bross tätig, seit Juli 1972 als Verwalter der Dienstgeschäfte eines wissen- schaftlichen Assistenten.

